

LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

PHYSIQUE APPLIQUÉE

UN NOUVEAU MODÈLE MATHÉMATIQUE DE LENTILLE ÉLECTRONIQUE ⁽¹⁾

PAR PIERRE GRIVET.

Laboratoire de Radioélectricité de l'E. N. S.

Sommaire. — On établit les propriétés optiques des lentilles dont la fonction caractéristique axiale peut être mise sous la forme $T(z) = T_0 \operatorname{sech} \frac{z}{b}$. La description des rayons électroniques et des éléments cardinaux, fait appel aux propriétés des fonctions de Legendre d'indice ν faible, mais non entier; on en donne diverses expressions approchées. On applique les résultats de cette théorie à la lentille magnétique symétrique avec succès. On donne, de plus, un calcul simple du champ axial en fonction des dimensions des pièces polaires, la perméabilité du fer étant supposée infinie.

A. Le Modèle.

1. Lentille à deux cylindres. — Il est connu depuis longtemps [1] que le potentiel le long de l'axe d'une lentille formée de deux cylindres de même axe et de même diamètre, séparés par une coupure infiniment mince est donné par la formule

$$\varphi(z) = \frac{\varphi_1 + \varphi_2}{2} \left(1 + \frac{1 - \gamma}{1 + \gamma} \operatorname{th} \omega z \right), \quad (1)$$

φ_1 et φ_2 étant les potentiels des deux cylindres de rayon unité, $\gamma = \frac{\varphi_1}{\varphi_2}$; $\omega = 1,318$; mais on ne sait pas intégrer les équations des rayons correspondant à cette forme de $\varphi(z)$. Hutter [2] a remarqué que la courbe $\varphi(z)$ avait la même allure que

$$\psi(z) = \psi_0 e^{k \operatorname{arctg} \frac{z}{a}} \quad (2)$$

qui mène à une équation des rayons résoluble, celle de Glaser [3]. Mais il a essayé de représenter au mieux la fonction $\varphi(z)$ par $\psi(z)$ et n'a pu y parvenir que grossièrement, ce qui le mena à des résultats optiques peu précis. Au contraire, si comme Bernard et l'auteur [4] l'ont proposé, on renonce à repré-

senter $\varphi(z)$ avec une exactitude inutile, mais qu'on s'attache à trouver une cloche de Glaser

$$B(z) = \frac{B_0}{1 + \left(\frac{z}{a} \right)^2}$$

qui se rapproche le mieux de la courbe réelle $\frac{\sqrt{3}}{4} \frac{\varphi'}{\varphi}$, on obtient des résultats très précis, car il se trouve que la cloche réelle est naturellement symétrique et fort voisine du modèle : le lecteur se reportera à la Note de Bernard et Grivet sur ce point. La lentille à interstice, de même forme, ainsi que la lentille formée de deux plans parallèles percés de trous égaux, peuvent être traitées de la même manière.

2. Utilité d'un autre modèle. — Cette étude fait apparaître un défaut du modèle de Glaser qui se manifeste également dans son application à la lentille magnétique, lorsque son blindage est loin de la saturation. La représentation est bonne au centre de la lentille, mais mauvaise sur ses deux bords : en effet, le champ de fuite réel décroît très vite dans ces deux cas, suivant une loi exponentielle, comme le montre bien la formule (1) dans l'exemple électrostatique et comme on le constate aussi sur les courbes expérimentales de lentilles magnétiques. Cette loi exponentielle paraît être caractéristique

⁽¹⁾ Cet article développe une communication de l'auteur au Congrès International de Physique Electronique de Washington (5 et 7 novembre 1951).

de la décroissance du champ chaque fois qu'elle est produite par un effet de « blindage » marqué.

Au contraire, la courbe de Glaser a une décroissance très lente, beaucoup trop lente.

On rattrape naturellement largement l'écart entre le modèle et la réalité, en choisissant habilement le paramètre a . Une méthode simple et efficace consiste à définir a de manière que

$$B_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dr}{\left(1 + \frac{r^2}{a^2}\right)^2} = \frac{3}{16} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{\varphi'}{\varphi}\right)^2 dr, \quad (3)$$

ce qui revient à assurer la même valeur au premier terme, dans le développement de la distance focale, qu'à donné Picht [5]; ce développement étant très convergent, le procédé est bon. Mais il s'agit là d'une compensation dont l'exactitude (de l'ordre de quelques pour-cent) est difficile à évaluer et il vaudrait mieux l'éviter. C'est ce qui a conduit l'auteur (4) à étudier un modèle plus satisfaisant sur ce point.

3. Le nouveau modèle. — 3.1. L'auteur a proposé le nouveau modèle

$$B(z) = B_0 \operatorname{sech} \frac{z}{b} \quad (4)$$

pour lequel on a

$$b = 0,7593 a, \quad (5)$$

a étant la demi-largeur de la cloche à mi-hauteur.

3.2. Rayons de Gauss. — En prenant b pour unité de longueur ($\frac{z}{b} = x$, $R = \frac{r}{b}$), l'équation des rayons gaussiens est

$$R'' \operatorname{ch}^2(x) + h^2 R = 0, \quad (6)$$

avec $h = 0,7593 k$; k , paramètre classique défini dans [3] par

$$k^2 = \frac{e B^2}{8 m \varphi_0} a^2. \quad (7)$$

Le changement de variable $u = \operatorname{th}(x)$ ramène cette équation au type de Legendre

$$(1-u^2) \frac{d^2 R}{du^2} - 2u \frac{dR}{du} + \nu(\nu+1)R = 0 \quad (8)$$

et l'expression du rayon général s'écrit

$$R = A P_\nu[\operatorname{th}(x)] + B P_\nu[-\operatorname{th}(x)],$$

$P_\nu(u)$ étant la fonction de Legendre d'ordre ν avec $\nu(\nu+1) = h^2$. Les cas $\nu = n$ entier sont physiquement significatifs et mathématiquement singuliers; alors la fonction $P_\nu(u)$ devient le polynôme $P_n(u)$ et $P_n(-u)$ doit être remplacé par $Q_n(u)$ fonction de deuxième espèce.

(4) P. GRIVET. C. R. Acad. Sc., 1951, **233**, 921 et 1952, **234**, 73.

F. Lenz a été conduit indépendamment à la même solution dans ses études de la lentille magnétique (cf. Ann. Physik, 6^e série, 1951, **9**, 245-259).

3.3. Valeurs remarquables $\nu = n$ entier. — Que ν soit entier ou non, le rayon $r = P_\nu[\operatorname{th}(x)]$ est toujours un rayon principal, parallèle à l'axe à la distance 1, pour $x \rightarrow +\infty$, car on a toujours $P_\nu(1) = 1$ et $P_\nu(1)$ est fini; la dépendance $u = \operatorname{th}(x)$ assure le comportement asymptotique convenable. Mais si ν est un entier n , ce rayon principal émerge encore de la lentille parallèlement à l'axe pour $x \rightarrow -\infty$, car $P_n(-1) = 1$ si n est entier: la lentille est alors afocale au sens classique du mot. A l'intérieur de la lentille, le rayon coupe n fois l'axe, donnant lieu à n foyers immergés G_n symétriques par rapport au centre optique, qui est l'un d'eux lorsque n est impair; c'est le seul lorsque $n = 1$,

$$r = A \operatorname{th}(x) + B x \operatorname{th}(x). \quad (9)$$

Les valeurs $\nu = n$ pour lesquelles le système est classiquement afocal, séparent les valeurs de ν correspondant aux systèmes convergents ($0 < \nu < 1$, $3 < \nu < 4$, $5 < \nu < 6$, ...) de celles donnant des systèmes divergents ($2 < \nu < 3$, $4 < \nu < 5$, ...). Dans les instruments actuels, on évite toujours les foyers multiples et nous pourrions limiter l'étude par la condition $0 < \nu \leq 1$, $0 < h^2 \leq 2$.

3.4. Eléments cardinaux classiques. — Ils définissent la correspondance homographique entre les deux asymptotes de chaque rayon. Or le développement de $P_\nu(u)$ au voisinage de $u = -1$ est connu (cf. [6], p. 224) et donne, après quelques transformations,

$$P_\nu(\operatorname{th} x) \rightarrow \frac{\sin \nu \pi}{\pi} \{ 2x + 2[\psi(\nu) + C] + \pi \cot(\pi \nu) \}, \quad (10)$$

C étant la constante d'Euler, $\psi(\nu)$ la dérivée logarithmique de ν ! On obtient finalement pour la position du foyer z_F la distance focale f et la rotation de l'image φ

$$\frac{z_F}{b} = \psi(\nu) + C + \frac{\pi}{2} \cot(\pi \nu), \quad (11)$$

$$\frac{f}{b} = \frac{\pi}{2 \sin(\nu \pi)}, \quad (12)$$

$$\varphi = \pi h. \quad (13)$$

Ces lois diffèrent peu de celles de Glaser quand les lentilles sont faibles, mais les écarts deviennent importants lorsque la convergence est forte. On note, en particulier, que la lentille de projection la plus convergente est définie par $\nu = \frac{1}{2}$; $k = 1,14$, $f = 1,19 a$ au lieu de $k = 1$, $f = 1,5 a$.

La fonction $\psi(\nu)$ est bien tabulée, en particulier dans les tables de Jahnke-Emde; elle ne varie d'ailleurs que de 0 à 1, lorsque ν passe de 0 à 1. La figure 1 montre l'allure des courbes z_F et f en fonction de k .

3.5. Immersion. — Lorsque l'objet ou l'image (ou l'un et l'autre) sont immergés dans le champ,

il n'existe plus de correspondance homographique rigoureuse entre objet et image : le champ considéré ici n'est pas « newtonien » au sens de Glaser [3] et [7]

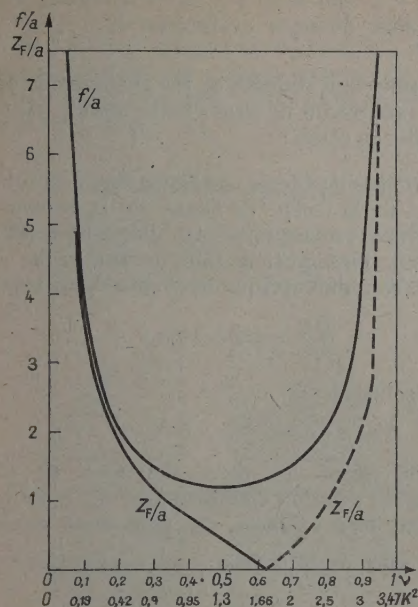


Fig. 1. — Éléments cardinaux classiques.
 f , distance focale; z_F , position du foyer.

et il n'existe plus d'éléments cardinaux valables pour *tous* les couples objet-image; il est facile de le vérifier dans le cas simple $\nu = 1$. Mais les éléments cardinaux définis par Glaser [3] et que nous appellerons brièvement « immergés » restent précieux pour décrire la correspondance objet-image au voisinage du couple conjugué : foyer-infini (cf. [7], p. 373). La position du foyer G est donnée par

$$P_\nu(u_\nu) = 0, \quad u_\nu = \text{th}(x_G), \quad z_G = b x_G, \quad (14)$$

u étant l'une des n racines réelles de $P_\nu(u) = 0$, n étant l'entier immédiatement supérieur à ν , racine unique si $0 < \nu \leq 1$. La distance focale immergée g est alors

$$\frac{b}{g} = \frac{P'_\nu(u_\nu)}{\text{ch}^2(x_G)} = \frac{2 \sin(\nu\pi)}{\pi P_\nu(-u_\nu)}, \quad (15)$$

la seconde expression étant commode lorsque ν est petit. La distance focale g diffère de f classique dans la mesure où $P_\nu(-u_\nu)$ s'écarte de 1 et l'immersion est négligeable tant que $\nu \leq 0,3$ ($P_\nu \geq 0,98$); la position de G tend vers celle du foyer classique F quand ν est petit ($x_F = x_G = \frac{1}{2\nu}$). La rotation de l'image dépend de la position de l'objet; entre le foyer et l'infini elle est

$$\varphi = \left[\frac{\pi}{2} - \arctg(\text{sh } x_G) \right] h. \quad (16)$$

La valeur g_0 de g pour laquelle le foyer G est au centre de la lentille caractérise un type important d'objectif de microscope; elle vaut ici : $g_0 = 0,7593 a$ pour $\nu = 1$, $k^2 = 2$, valeurs sensiblement différentes de $g_0 = a$, $k^2 = 3$ pour le modèle de Glaser et qui serrent de plus près la réalité, en particulier, la relation entre ampères-tours (At), la demi-largeur a (millimètres) et le champ au centre de la lentille B (kilo-gauss), s'écrit ici

$$B_0 a = 5,27 \text{ At}, \quad (17)$$

alors que les valeurs expérimentales du coefficient numérique s'échelonnent entre 4,4 et 5,8 dans les mesures de Ruska [8]. Le modèle de Glaser donnant 4. Les valeurs de k qui rendent la lentille afocale sont faciles à mesurer; leur répartition fournit un test

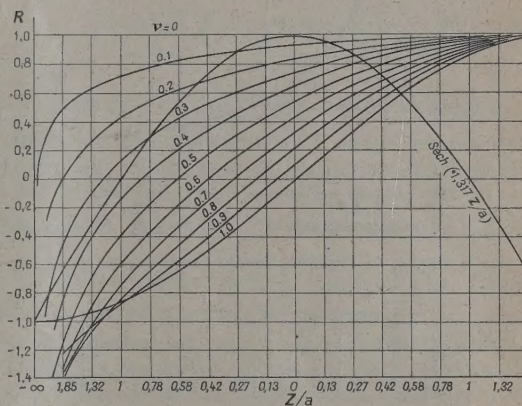


Fig. 2. — Trajectoires électroniques dans le nouveau modèle.

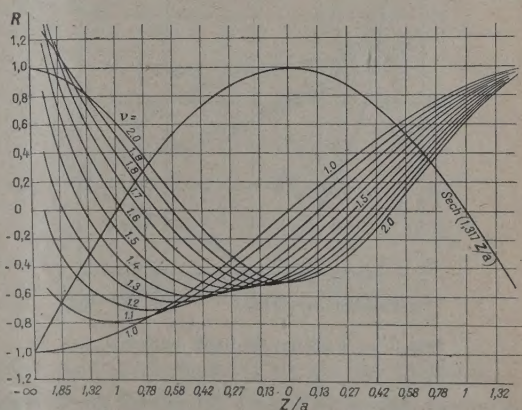


Fig. 3. — Trajectoires électroniques dans le nouveau modèle.

expérimental commode, permettant de choisir le modèle approprié : la suite de ces valeurs est ici 3,469; 10,404; 20,808; $n(n+1) \times 1,7344$, au lieu de 3, 8, 15; $n'(n'+1)$.

Il faut remarquer aussi que g_0 n'est pas un mini-

mum pour g , conformément à ce qu'on observe en réalité.

Schelkunoff (cf. [9], p. 423-424) donne un réseau de courbes très précieuses représentant $P_\nu(\cos \theta)$ en fonction de θ , pour les valeurs de ν échelonnées de 0,2 entre 0 et 2; ce sont les *trajectoires principales*

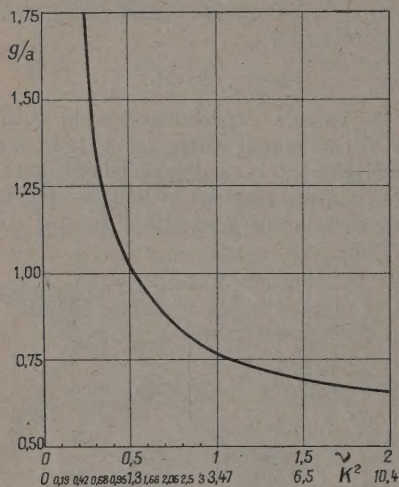


Fig. 4. — Distance focale « immergée » g .

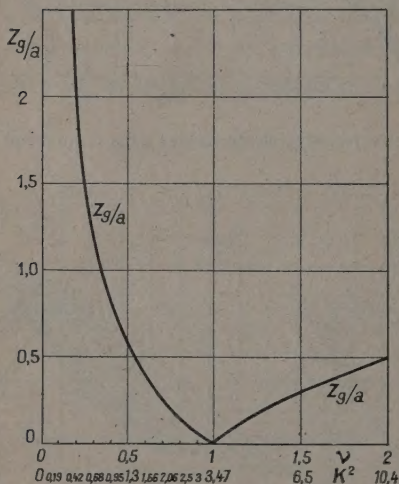


Fig. 5. — Position du foyer immergé z_g .

légèrement déformées à leurs extrémités par la transformation $\cos \theta = \tanh x$; ces diagrammes sont reproduits figures 2 et 3, avec une échelle des abscisses graduée en x . Les courbes des figures 4 et 5 donnent g et z_g ; pour les calculer, on peut s'aider des formules d'approximation de l'appendice.

Les valeurs de g et z_g ainsi obtenues sont en excellent accord avec les mesures expérimentales de Ruska [8], sur la lentille qu'il cote objectif f

(fig. 20 de son Mémoire); la figure 21 du même Mémoire est en bon accord également avec les valeurs prévues pour f et z_F par notre théorie. Les valeurs de g , z_g , f , z_F qui nous ont servi à établir les graphiques sont données au tableau I.

4. Le nouveau modèle et les théories en cours.

— Il est intéressant de situer notre modèle au milieu des théories en cours :

4.1. *Modèle de Glaser.* — Nous pouvons subvenir au défaut de la cloche de Glaser de la manière suivante. Nous remarquons que l'équation différentielle dont l'intégration fait le succès de notre méthode, se réduit lorsque z est grand, au type

$$\frac{d^2 R}{dx^2} + 4h^2 e^{-2x} R = 0, \quad (18)$$

dont la solution est

$$R = A J_0(2h e^{-x}) + B N_0(2h e^{-x}), \quad (19)$$

J_0 et N_0 étant les deux fonctions de Bessel, d'ordre zéro; solution commode, car les fonctions J_0 et N_0 sont bien tabulées. On peut donc remplacer les deux ailes de la courbe $\frac{1}{(1 + \frac{z^2}{a^2})}$ par deux expo-

nentielles et compléter la trajectoire classique de Glaser valable dans la région centrale, par deux morceaux de courbe (17) qu'on lui raccorde aux deux points où la caractéristique réelle commence à devenir exponentielle.

4.2. *Méthodes de minimum.* — Récemment, Glaser [10] a cherché à intégrer l'équation des rayons par une méthode variationnelle; il se donne, *a priori*, un point objet et le point image et cherche à déterminer un paramètre de la courbe de champ, h par exemple ici, pour qu'il existe effectivement un faisceau de rayons joignant l'objet à l'image. On doit avoir alors (cf. [9], p. 224)

$$h^2 = \frac{\int_0^i R'^2 dx}{\int_0^i R^2 \operatorname{sech}^2(x) dx} \quad (20)$$

et comme l'a remarqué d'abord Lord Rayleigh, on a une très bonne précision sur h , en calculant le deuxième membre à l'aide d'une fonction R grossièrement approchée.

Cette méthode est excellente pour déterminer la distance focale immergée g , car le choix du rayon principal approché est facile; il ne peut évoluer qu'entre des limites très étroites, car il doit entrer dans la lentille parallèlement à l'axe à la distance 1 et couper l'axe au point $G(x_g)$ donné à l'avance et où il a une tangente d'inflexion.

Au contraire, si l'on désire F le foyer normal,

on a une beaucoup plus grande latitude et la détermination d'une fonction approchée est bien plus délicate; la méthode est moins efficace. C'est ce que montre bien notre modèle : on peut, pour chaque valeur de f et de g , calculer la valeur de l' ω de Glaser qui nous fournirait les valeurs exactes de f et g : on trouve deux fonctions $\omega_1(k)$ et $\omega_2(k)$ fort différentes pour f et g .

B. La Lentille magnétique.

1. **Champ axial.** — Le type le plus simple de lentille magnétique est représenté figure 6 et a été étudié expérimentalement par Le Poole et Ments [11].

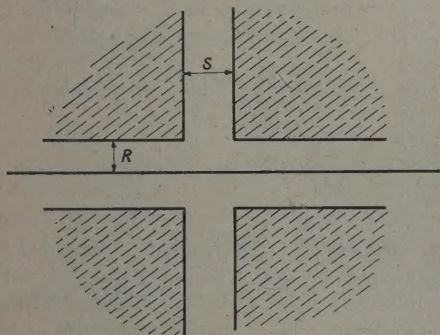


Fig. 6. — Schéma de lentille magnétique symétrique la plus simple.

Nous allons lui appliquer la théorie du paragraphe précédent.

Nous nous limiterons au cas où la perméabilité du fer reste très grande en tout point des pièces polaires et nous la supposons infinie. Nous pouvons alors essayer de représenter le champ par la formule donnée par Bertram [1]. Dans le cas du champ magnétique, la loi d'Ampère donne la différence de potentiel magnétique scalaire entre les deux pôles, $\Phi_2 - \Phi_1$, sous la forme

$$\Phi_2 - \Phi_1 = nI_s = \frac{1}{\mu_0} \int_{-\infty}^{+\infty} B dr, \quad (21)$$

nI étant le nombre d'ampères-tours magnétisants et la formule de Bertram s'écrit

$$B = \frac{\mu_0 n I}{2R} \frac{\text{sh } \omega \varepsilon}{\varepsilon \text{ch } \omega \left(z + \frac{\varepsilon}{2}\right) \text{ch } \omega \left(z - \frac{\varepsilon}{2}\right)}, \quad (22)$$

avec $\varepsilon = \frac{s}{R}$, s étant la valeur de l'entrefer; $\omega = 1,318$, formule qui s'écrit en utilisant la valeur maxima du champ sur l'axe : B_m , observée au centre de la lentille

$$B = B_m \frac{\text{ch}^2 \frac{\omega}{2} \varepsilon}{\text{ch } \omega \left(z + \frac{\varepsilon}{2}\right) \text{ch } \omega \left(z - \frac{\varepsilon}{2}\right)}, \quad (23)$$

car la valeur de B_m est

$$B_m = \frac{\mu_0 n I}{R \varepsilon} \text{th } \frac{\omega}{2} \varepsilon, \quad (24)$$

qu'il est commode de comparer à la valeur du champ dans l'entrefer B_0

$$B_0 s = \mu_0 n I, \quad (25)$$

d'où

$$\frac{B_m}{B_0} = \text{th } \frac{\omega \varepsilon}{2}. \quad (26)$$

La demi-largeur a de la courbe réelle à mi-hauteur, résulte de la formule (23), on obtient

$$\text{ch} \left(2 \omega \frac{a}{R} \right) = 2 + \text{ch} \left(\omega \frac{s}{R} \right), \quad (27)$$

les valeurs de $\frac{a}{R}$ et de $\frac{B_m}{B_0}$ sont représentés figure 7.

On vérifie que la formule (27) donne des résultats en excellent accord avec le graphique expérimental de Le Poole (fig. 7); la courbe théorique en est indiscernable tant que $\frac{s}{R} < 2$ et l'écart seulement

de 5 pour 100 environ pour $\frac{s}{R} = 4$. Le Poole n'a pas publié la courbe donnant B_0 en fonction de ε , mais nous vérifierons indirectement la formule (26) en calculant les propriétés optiques et en les comparant aux graphiques de Le Poole; nous pouvons aussi la comparer à la courbe calculée de manière très

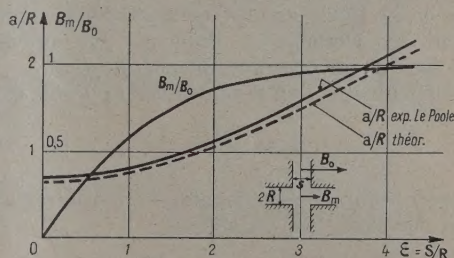


Fig. 7. — Caractéristiques de la lentille magnétique symétrique.

précise par Liebmann [12] par la méthode de relaxation. L'accord est très bon.

2. **Adaptation du modèle.** — Pour calculer les éléments cardinaux, nous pourrions adopter notre modèle du paragraphe précédent à la courbe (23) en choisissant même valeur de B_0 et en calculant la largeur a' du modèle par la condition

$$\int_{-\infty}^{+\infty} B_{\text{réel}}^2 dz = \int_{-\infty}^{+\infty} B_{\text{modèle}}^2 dz, \quad (28)$$

TABLEAU I.

Eléments cardinaux dans le nouveau modèle.

ν .	k^2 .	$\frac{z_0}{a}$.	$\frac{g}{a}$.	$\frac{f}{a}$.	$\frac{z_g}{a}$.
0,1.....	0,1908	3,787	3,86	3,850	3,787
0,2.....	0,4163	1,861	2,025	2,029	1,860
0,3.....	0,6765	1,190	1,450	1,474	1,176
0,4.....	0,9539	0,8302	1,180	1,254	0,779
0,5.....	1,301	0,5914	1,0276	1,193	0,466
0,6.....	1,659	0,4200	0,932	1,254	0,1464
0,7.....	2,065	0,2847	0,864	1,474	-0,2700
0,8.....	2,496	0,1745	0,820	2,029	-0,987
0,9.....	2,965	0,0810	0,786	3,860	-2,962
0,95.....	3,211	-	-	7,525	-6,796
1.....	3,469	0	0,7593	∞	∞
1,1.....	4,007	0,0717	0,739	$T(z) = \text{sech}\left(1,317 \frac{z}{a}\right)$	
1,2.....	4,579	0,1359	0,722		
1,3.....	5,186	0,1933	0,708	$\frac{d^2 R}{dz^2} + \frac{k^2}{a^2} T^2(z) R = 0$	
1,4.....	5,828	0,2477	0,697		
1,5.....	6,504	0,2968	0,688		
2.....	10,407	0,500	0,658		

ce qui donne

$$\frac{a'}{R} = \frac{1}{2} \left(\coth \frac{\omega \varepsilon}{2} \right)^2 \left(\frac{\omega \varepsilon}{\text{th } \omega \varepsilon} - 1 \right). \quad (29)$$

L'évaluation de a' montre que le modèle est bon, car a' se confond presque avec a (on a, par exemple, pour $s = 0$, $a_0 = 0,667$, $a'_0 = 0,669$).

3. Propriétés optiques. — On vérifie sur les courbes de Le Poole que les formules données précédemment au chapitre A donnent une prévision précise des valeurs observées pour f , z_g , g , z_0 .

En particulier, si l'on désigne avec Le Poole par K

$$K = \frac{(nI)^2}{U}, \quad (30)$$

nI ampères-tours magnétisants, U tension d'accélération des électrons, on obtient

$$K = 28,796 \left(\frac{\varepsilon}{\text{th } \frac{\omega}{2} \varepsilon} \right)^2 \frac{R^2}{a^2} k^2 \quad (31)$$

en bon accord avec l'expérience.

On vérifie aussi que cette formule donne bien la valeur de K_{\min} correspondant à la valeur minimum de la distance focale d'une lentille projective : il suffit dans la formule précédente de faire $k_{\min}^2 = 1,3$; on obtient un peu plus de précision en distinguant entre a' du modèle et a de la réalité, ce qui mène à

$$K_{\min} = 115,184 \varepsilon^2 \text{th}^2 \frac{\omega}{2} \varepsilon \frac{1,3}{[\omega \varepsilon \coth(\omega \varepsilon) - 1]^2}. \quad (32)$$

Les valeurs prévues pour le minimum de f , f_{\min} sont bonnes aussi. On peut faire un calcul analogue pour

le foyer immergé et déterminer la valeur k_0 pour laquelle G vient au centre de la lentille et la valeur g_0 correspondante; il y a encore accord satisfaisant avec l'expérience, comme on peut le vérifier en comparant le tableau suivant aux graphiques de Le Poole et il semble bien que les écarts soient attribuables à la saturation du fer, les écarts les plus grands s'observent aux valeurs élevées de l'induction.

Le tableau II suivant donne quelques valeurs numériques ainsi calculées; le quotient $\frac{K}{k^2}$, la valeur K_0 pour laquelle le foyer immergé G vient au centre de la lentille et la distance focale correspondante g_0 ; la valeur K_{\min} pour laquelle la distance focale classique f est minima et la valeur f_{\min} correspondante.

TABLEAU II.

Quelques éléments d'une lentille magnétique.

$\frac{s}{R}$.	$\frac{a}{R}$.	$\frac{K}{k^2}$.	K_{\min} .	$\frac{f_{\min}}{R}$.	K_0 .	$\frac{g_0}{R}$.
0.....	0,669	148,5	193,2	0,798	515,1	0,508
0,5....	0,698	146,3	190,35	0,833	507,6	0,530
1.....	0,783	141	183,4	0,934	489	0,596
2.....	1,104	126	164	1,317	437	0,838
3.....	1,515	122	158,7	1,807	423	1,151
4.....	2,008	116,7	152	2,396	404,8	1,526
5.....	2,5	115,9	151	2,982	402	1,9

C. Appendice mathématique.

1. Plan des calculs. — Les fonctions $P_\nu(u)$ d'indice ν non entier et petit (ici pratiquement $0 < \nu < 1,5$) sont peu connues en physique.

C'est pourquoi nous donnerons ici quelques formules qui en facilitent l'usage : elles nous ont servi à établir les courbes et les tableaux de cet article.

Bien que le rayon électronique soit donné par la formule $P_\nu(\text{th } x)$, il est commode de baser les calculs sur la fonction plus usuelle $\Theta_\nu(\theta) = P_\nu(\cos \theta)$: le recours à la littérature mathématique et aux formulaires s'en trouve facilitée et la représentation des propriétés physiques n'est en rien obscurcie ; en effet, la correspondance $\text{th } x = \cos \theta$ est très simple et les lois en θ ont l'avantage de dilater la région la plus intéressante au point de vue de la formation des images : l'intérieur de la lentille où les rayons sont courbes ; les espaces objets et images extérieurs à la lentille sont alors contractés à l'extrême, mais ce défaut est de peu d'importance, car les rayons sont alors des droites bien représentées par les éléments cardinaux.

Les quantités qui nous intéressent ici sont :

Physique.	Mathématique.
Les éléments cardinaux classiques	Asymptotes de $P_\nu(\text{th } x)$ pour $x \rightarrow +\infty$
Position des foyers immergés	Valeur de la racine θ_G de $P_\nu(\cos \theta_G) = 0$
Distance focale immergée	Valeur de $\frac{dP_\nu(\cos \theta)}{d\theta}$ pour $\theta = \theta_G$

2. Asymptotes des rayons. — Schelkunoff donne le développement de $P_\nu(\cos \theta)$ lorsque θ est voisin de π ([9], p. 432, form. (71)]. Limité au terme principal, on a

$$P_\nu(\cos \theta) = \frac{2 \sin \nu \pi}{\pi} \left[\log \cos \left(\frac{\theta}{2} \right) + \psi(\nu) - \psi'(0) \right] + \cos \nu \pi. \quad (33)$$

On passe facilement aux x ($x \rightarrow -\infty$) par

$$\cos \theta = \text{th } x = (-1 + 2e^{2x}).$$

On obtient

$$P_\nu(\text{th } x) = \frac{2 \sin \nu \pi}{\pi} \left[x + \psi(\nu) + C + \frac{\pi}{2} \cot g \pi \nu \right], \quad (34)$$

avec

$$\psi(x) = \frac{d[\log(x!)]}{dx},$$

$$C = 0,577215,$$

d'où les formules (11) et (12) du texte, d'où l'on déduit les valeurs représentées graphiquement en se rappelant que

$$\frac{z}{a} = 0,7593x. \quad (35)$$

On a écrit ces formules en changeant le signe de x pour faire correspondre l'espace image à $x \rightarrow +\infty$.

3. Racines θ_G de $P_\nu(\cos \theta_G) = 0$. — Il est commode de distinguer deux domaines de valeurs de ν

$$0 < \nu < \frac{1}{2}, \quad \frac{1}{2} < \nu < \frac{3}{2}$$

et les valeurs limites

$$\nu = \frac{1}{2}, \quad \nu = 1, \quad \nu = \frac{3}{2}, \quad \nu = 2.$$

3.1. Valeurs limites $\nu = 1, \nu = 2$. — Alors les P_ν ont une expression très simple

$$P_1(\cos \theta) = \cos \theta, \quad (36)$$

$$P_2(\cos \theta) = \frac{1}{2}(3 \cos \theta - 1) = \frac{1}{4}(3 \cos 2\theta + 1) \quad (37)$$

et l'on a

$$\nu = 1, \quad \theta_G = \frac{\pi}{2};$$

$$\nu = 1,5, \quad \theta_G = 54^\circ 44'.$$

3.2. Valeurs limites $\nu = \frac{1}{2}, \nu = \frac{3}{2}$. — Les fonctions $P_{\frac{1}{2}}$ et $P_{\frac{3}{2}}$ s'expriment alors à l'aide des intégrales elliptiques complètes E et K de module $k = \sin \frac{\theta}{2}$. Il en va de même pour $P_{-\frac{1}{2}}$, qui est utile comme auxiliaire dans les formules de récurrence à trois termes relatives à $P_{\frac{1}{2}}$ et $P_{\frac{3}{2}}$.

3.2.1. $\nu = \frac{1}{2}$. — La formule de Mehler ([6], p. 27) donne

$$P_{\frac{1}{2}}(\cos \theta) = \frac{\sqrt{2}}{\pi} \int_0^\theta \frac{\cos \psi}{\sqrt{\cos \psi - \cos \theta}} d\psi. \quad (38)$$

En posant $\sin \psi = \sin \varphi \sin \frac{\theta}{2}$, on ramène l'intégrale à

$$P_{\frac{1}{2}}(\cos \theta) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{1 - 2 \sin^2 \varphi \sin^2 \frac{\theta}{2}}{\sqrt{1 - \sin^2 \varphi \sin^2 \frac{\theta}{2}}} d\varphi$$

$$= \frac{2}{\pi} \left(2 \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sqrt{1 - \sin^2 \varphi \sin^2 \frac{\theta}{2}} d\varphi - \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{d\varphi}{\sqrt{1 - \sin^2 \varphi \sin^2 \frac{\theta}{2}}} \right),$$

$$P_{\frac{1}{2}}(\cos \theta) = \frac{2}{\pi} \left[2 E \left(\sin \frac{\theta}{2} \right) - K \left(\sin \frac{\theta}{2} \right) \right], \quad (39)$$

avec des notations classiques que l'on trouvera décrites dans ([13], p. 170 et suiv.).

Par des raisonnements analogues, on établit que

$$P_{\frac{1}{2}}(\cos \theta) = \frac{2}{\pi} K \left(\sin \frac{\theta}{2} \right) \quad (40)$$

et les relations de récurrence des P (cf. [9], p. 433)

$$(2\nu + 1) \cos \theta P_\nu - (\nu + 1) P_{\nu+1} - \nu P_{\nu-1} = 0 \quad (41)$$

donnent

$$P_{\frac{\nu}{2}}(\cos \theta) = \frac{2}{3\pi} \left[8 \cos \theta E\left(\sin \frac{\theta}{2}\right) - (1 + 4 \cos \theta) K\left(\sin \frac{\theta}{2}\right) \right]. \quad (42)$$

Les tables de fonctions elliptiques permettent alors de déterminer facilement, par interpolation, les racines

$$\nu = \frac{1}{2}, \quad \theta_G = 132^\circ 42' 5'';$$

$$\nu = \frac{3}{2}, \quad \theta_G = 68^\circ 9'.$$

3.3. *Faibles valeurs de ν : $0 < \nu < \frac{1}{2}$.* — Si ν est inférieur à 0,2, le foyer classique F et le foyer immergé G sont confondus à $1/1000^e$ près. On a

$$\theta_G = \theta_F \quad (43)$$

et θ_F est fourni par l'asymptote, d'équation (34).

Lorsque ν est compris entre 0,2 et 0,6, cette formule du premier ordre n'est plus assez précise (erreur de 5 pour 100 à l'extrémité de l'intervalle environ); il faut compléter l'équation (34) par un terme correctif qu'on obtient par la méthode des perturbations (cf. [9], p. 196-199). En notant de manière abrégée l'équation de l'asymptote (34)

$$y_1 = \alpha x + \beta, \quad (44)$$

on a pour la deuxième approximation y_2 , x étant négatif,

$$y_2 = \alpha x + \beta - h^2 \int_{-\infty}^x \frac{(x-t)(\alpha t + \beta)}{\operatorname{ch}^2(t)} dt; \quad (45)$$

l'intégrale s'évalue aisément par intégration par parties, en utilisant successivement les fonctions $1 + \operatorname{th}(t)$, puis $t \operatorname{th} t - \log \operatorname{ch} t$ jusqu'à ce qu'on parvienne à $\int_{-\infty}^x \log \operatorname{ch}(t) dt$ que l'on intègre par un développement en série de e^{2t} , e^{4t} , ... On obtient

$$\left. \begin{aligned} y_2 &= (\alpha x + \beta) \left[1 - h^2 \log(1 + e^{2x}) \right. \\ &\quad \left. + \alpha h^2 \left(e^{2x} - \frac{e^{4x}}{4} + \frac{e^{6x}}{9} + \dots \right) \right], \\ \alpha &= \frac{2 \sin \nu \pi}{\pi}, \quad \beta = \frac{2 \sin \nu \pi}{\pi} [\psi(\nu) + C] + \cos \nu \pi, \\ h^2 &= \nu(\nu + 1) \end{aligned} \right\} \quad (46)$$

et, en particulier, on a très simplement la différence $x_G - x_F$

$$\left. \begin{aligned} x_G - x_F &= \frac{-\alpha h^2 \left(e^{2x} - \frac{e^{4x}}{4} + \frac{e^{6x}}{9} + \dots \right)}{1 - h^2 \log(1 + e^{2x})}, \\ x &= x_G. \end{aligned} \right\} \quad (47)$$

3.4. *Valeurs moyennes $\frac{1}{2} < \nu < \frac{3}{2}$.* — Au voisinage de $\theta = \frac{\pi}{2}$, $P_\nu(\cos \theta)$ peut être développé en série de puissances de $\cos \theta$ ([9], p. 432, form. (72)], mais les valeurs intéressantes de θ s'étendent de $\frac{\pi}{4}$ à $\frac{3\pi}{4}$ et la série converge mal aux deux bords de cet intervalle. Nous nous en servons seulement pour déterminer les éléments initiaux d'une représentation plus commode. En $\theta = \frac{\pi}{2}$ on a

$$P_\nu(0) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \frac{\left(\frac{\nu-1}{2}\right)!}{\left(\frac{\nu}{2}\right)!}, \quad (48)$$

$$\left. \frac{d(P_\nu \cos \theta)}{d\theta} \right|_{\theta=\frac{\pi}{2}} = -\frac{1}{\pi} \frac{\sin \nu \pi}{P_\nu(0)}, \quad (49)$$

la fonction $x!$ est de variation très lente dans le domaine envisagé ici $0 < \nu \leq 1,5$, car l'argument dans les formules précédentes est toujours voisin de celui qui rend $x!$ minimum

$$x_m = 0,46163, \quad x_m! = 0,88560.$$

On peut toujours se ramener à des factorielles comprises entre 0,8856 et 1 en utilisant la définition

$$(x+1)! = (x+1)(x!)$$

valable aussi pour x négatif ($\nu < 1$).

Il est facile d'interpoler la fonction $(x!)$ par une formule parabolique dans cette région, mais c'est à peine nécessaire, car elle est très bien tabulée.

Nous utiliserons les formules (48) et (49) pour fixer les constantes φ et A dans la représentation approchée (cf. [9], p. 417 et suiv.)

$$P_\nu(\cos \theta) = \frac{A \sin(\gamma \theta - \varphi)}{\sqrt{\sin \theta}}, \quad (50)$$

$$\gamma^2 = \left(\nu + \frac{1}{2}\right)^2 + \frac{1}{4}. \quad (51)$$

On obtient

$$\operatorname{tg}\left(\varphi - \frac{\pi}{2} \gamma\right) = \frac{\gamma}{2} \left[\frac{\left(\frac{\nu-1}{2}\right)!}{\left(\frac{\nu}{2}\right)!} \right]^2 \cot \frac{\pi \nu}{2}, \quad (52)$$

$$\theta_G = \frac{\pi}{\gamma}. \quad (53)$$

La connaissance de A n'est pas nécessaire pour le calcul de θ_G , mais se montrera utile pour celui de $\frac{dP_\nu}{d\theta}$, on a

$$\gamma A = \frac{-2}{\sqrt{\pi}} \frac{\sin \frac{\pi \nu}{2}}{\cos\left(\gamma \frac{\pi}{2} - \varphi\right)} \frac{\left(\frac{\nu}{2}\right)!}{\left(\frac{\nu-1}{2}\right)!}. \quad (54)$$

Ces formules sont très précises et donnent θ_G avec une erreur relative bien inférieure à 0,001 dans tout l'intervalle utile.

4. **Pente** $\frac{dP_\nu(\cos\theta)}{d\theta}$. — Nous distinguerons ici les mêmes domaines en ν que pour le calcul de θ_G .

4.1. ν entier. — Alors les formules (36) et (37) donnent directement

$$\frac{dP_1(\cos\theta)}{d\theta} = -1, \quad \frac{dP_2(\cos\theta)}{d\theta} = -1,5.$$

4.2. $\nu = \frac{1}{2}$, $\nu = \frac{3}{2}$. — Les formules donnant la dérivée des intégrales elliptiques par rapport à leur module sont simples et connues (cf. [13], p. 173, form. (789-1) et (789-2)). On obtient avec leur aide en dérivant notre formule (39)

$$\left. \begin{aligned} \nu &= \frac{1}{2}, \quad \theta = (\theta_G)_{\frac{1}{2}}, \\ \frac{dP_{\frac{1}{2}}}{d\theta} &= -\frac{K\left(\sin\frac{\theta}{2}\right)}{\pi \sin\theta} = -0,9746. \end{aligned} \right\} \quad (55)$$

Pour $\nu = \frac{3}{2}$, il est d'ailleurs plus simple d'utiliser la relation de récurrence

$$\frac{dP_\nu}{d\theta} = \frac{-\nu}{\sin\theta} P_{\nu-1}, \quad \theta = (\theta_G)_\nu; \quad (56)$$

elle mène à

$$\left. \begin{aligned} \nu &= \frac{3}{2}, \quad \theta = (\theta_G)_{\frac{3}{2}}, \\ \frac{dP_{\frac{3}{2}}}{d\theta} &= \frac{-3}{\pi} \frac{(2E - K)}{\sin\theta} = -1,1884. \end{aligned} \right\} \quad (57)$$

4.3. ν petit $0 < \nu < \frac{1}{2}$ (bord de la lentille). —

Alors on utilise le Wronskien de l'équation de Legendre (cf. [9], p. 424) qui donne en $\theta = \theta_G$

$$\frac{dP_\nu(\cos\theta)}{d\theta} = \frac{2 \sin \gamma \pi}{\pi \sin \theta} \frac{1}{P_\nu(-\cos\theta)}. \quad (58)$$

où θ_G est assez voisin de π pour qu'on puisse utiliser le développement en série classique

$$\begin{aligned} P_\nu(\cos\theta) &= 1 - \nu(\nu+1) \sin^2 \frac{\theta}{2} \\ &+ \frac{(\nu-1)\nu(\nu+1)(\nu+2)}{4} \sin^4 \frac{\theta}{2} \\ &- (\nu-1)\theta_G \left(\sin \frac{\theta}{2} \right). \end{aligned} \quad (59)$$

4.4 *Intérieur de la lentille* — $\frac{1}{2} \leq \nu \leq \frac{3}{2}$. —

L'expression (50) est suffisamment exacte pour qu'on puisse la dériver, ce qui donne

$$\theta = \theta_G, \quad \frac{dP_\nu(\cos\theta)}{d\theta} = \frac{\gamma A}{\sqrt{\sin\theta_G}}. \quad (60)$$

Néanmoins aux bords de l'intervalle, l'erreur atteint plusieurs millièmes; mais on peut utiliser alors la deuxième approximation obtenue par la méthode des perturbations. On l'obtient le plus simplement en intégrant la formule classique

$$\frac{d}{d\theta} [\sin\theta P_\nu(\cos\theta)] = -\nu(\nu+1) \sin\theta P_\nu(\cos\theta). \quad (61)$$

Si nous posons

$$m = \frac{dP_\nu(\cos\theta)}{d\theta} \quad (62)$$

et que nous appellions m_1 la valeur de m , en $\theta = \theta_G$ donnée par (60), m_2 la valeur améliorée et m_0 la pente en $\theta = \frac{\pi}{2}$, nous obtenons, en substituant (50) au deuxième membre de (61),

$$\left. \begin{aligned} m_2 \cos \alpha &= m_0 + h^2 m_1 \sqrt{\cos \alpha} \left(\frac{1 - \cos \gamma \alpha}{\gamma^2} - \frac{\alpha^4}{48} \right), \\ \alpha &= \theta_G - \frac{\pi}{2}. \end{aligned} \right\} \quad (63)$$

Manuscrit reçu le 28 novembre 1951.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] BERTRAM S. — *P. I. R. E.*, 1940, **28**, 418-420; *J. appl. Phys.*, 1942, **13**, 496-502.
- [2] HUTTER R. G. E. — *J. appl. Phys.*, 1945, **16**, 680-699.
- [3] GLASER W. — *Z. Physik*, 1941, **117**, 285-315.
- [4] BERNARD M. et GRIVET P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 788-790; *Ann. Radioélectr.*, 1952, **7**, 3-9.
- [5] PICT J. — *Electronoptics*, Edwards, 1944, p. 115-121.
- [6] HOBSON E. W. — *Spherical and Ellipsoidal Harmonics*, Cambridge, 1931.
- [7] GLASER W. et BERGMANN O. — *Z. ang. Math. Physik*, 1950, **2**, 363-379.
- [8] RUSKA E. — *Arch. Elektrotechnik*, 1944, **38**, 102-130.
- [9] SCHELKUNOFF. — *Appl. Mathematics*, New-York, 1948.
- [10] GLASER W. — *Ann. Physik*, 1950, **7**, 213-227.
- [11] LE POOLE J. B. et MENTZ M. J. — *J. appl. Sc. Res.*, Netherland, 1947, **1**, 3-17.
- [12] LIEBMAN G. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 956-972.
- [13] DWIGHT H. B. — *Tables of integrals and other mathematical Data*, New-York, 1947.

ÉTUDE DE LA DENSITÉ DE NEUTRONS DANS LA PILE DE CHATILLON

Par A. ERTAUD et R. BEAUGÉ.

Commissariat à l'Énergie atomique.

Sommaire. — La répartition de la densité de neutrons dans la pile de Châtillon a été étudiée à l'aide de détecteurs de manganèse, préalablement étalonnés à l'aide d'une source ($Ra \rightarrow \alpha \rightarrow Be$) dans une cuve à eau.

Les résultats sont donnés sous forme de courbes de variation de densité dans les parties accessibles de la pile. De ces courbes, on déduit un étalonnage des appareils de mesure du tableau de commande et la valeur expérimentale du laplacien de la pile.

Méthode employée. — Pour déterminer la densité des neutrons dans les régions accessibles de la pile de Châtillon ⁽¹⁾ (réflecteur, colonne diffusante et tube central), nous avons utilisé la méthode suivante :

a. On étalonne une série de détecteurs de manganèse à l'aide d'une source ($Ra \rightarrow \alpha \rightarrow Be$) dans une cuve à eau;

b. Les détecteurs ainsi étalonnés sont placés dans les régions à étudier et leur activité après irradiation est mesurée au compteur G. M. L'étalonnage préalable de ces détecteurs permet alors de déterminer la densité de neutrons régnant dans la région où étaient placés les détecteurs.

Étalonnage des détecteurs. — Nous avons utilisé deux sortes de détecteurs de manganèse relativement épais (alliage à 10 pour 100 de nickel; dimensions : 11×13 mm; poids : 200 mg; épaisseur : $0,135$ g/cm², dont $0,121$ g/cm² de manganèse) et des détecteurs plus minces réalisés par dépôt d'acétate de manganèse sur plexiglas ($0,01$ g de manganèse par centimètre carré). Quatre de ces détecteurs ont été étalonnés dans une cuve à eau à l'aide d'une source $Ra \rightarrow \alpha \rightarrow Be$ de 621 mC. Les détecteurs sont placés à 10 cm de la source (maximum de densité).

La densité de neutrons à 10 cm de la source, dans la cuve, a été prise égale à $0,0492$ neutrons par centimètre cube [d'après les résultats des mesures faites par R. Cohen ⁽²⁾].

Comme nous avons utilisé un assez grand nombre de détecteurs, il a semblé plus simple de les étalonner dans un champ neutronique plus commode à manipuler. Ce champ était constitué par un bloc de paraffine de $20 \times 20 \times 25$ cm dans lequel était placée une source $Ra \rightarrow \alpha \rightarrow Be$. Les quatre détecteurs mentionnés ci-dessus ont servi à établir la correspondance entre les deux champs utilisés.

Régions étudiées. — La densité de neutrons a été mesurée dans les régions suivantes :

- 1° Dans les canaux expérimentaux ménagés dans le réflecteur;
- 2° Dans la colonne diffusante;
- 3° Dans le tube creux placé sur l'axe de la pile.

Mesure de la densité de neutrons dans le réflecteur et la colonne diffusante. — Les canaux expérimentaux de la pile peuvent être obturés complètement à l'aide de blocs de graphite (dimensions : $99 \times 99 \times 600$ mm). Les détecteurs sont placés dans des fentes ménagées dans ces blocs. Les positions relatives des canaux expérimentaux ménagés dans le réflecteur sont données (fig. 1 et 2). Les détecteurs ainsi disposés sont irradiés suivant les cas, pendant 15 ou 30 mn et une correction est faite pour ramener la valeur des comptages à la saturation.

La courbe (fig. 3) montre la répartition des densités de neutrons en valeur relative dans les canaux n°s 3 et 7.

La courbe (fig. 4) montre cette répartition dans le canal tangentiel n° 5 et la courbe (fig. 5), dans le canal tangentiel n° 1. Cette dernière courbe traduit la variation de densité de neutrons lorsqu'une des plaques est complètement enfoncée.

La courbe (fig. 6) montre la répartition de la densité de neutrons sur l'axe de la colonne diffusante. La variation de densité étant très grande dans la colonne diffusante, cette courbe est tracée à deux échelles différentes.

Mesure de la densité de neutrons dans le tube central. — La figure 7 représente la répartition de la densité de neutrons dans le tube central. On vérifie aisément que cette courbe est une sinusoïde; la théorie élémentaire prévoit cette forme dans les cas les plus simples.

Les courbes de variation des densités de neutrons

⁽¹⁾ Pour la description de la pile, voir L. KOWARSKI, *J. Physique Rad.*, 1951, **12**, 751-755.

⁽²⁾ R. COHEN, *Thèse*, Paris, 1951.

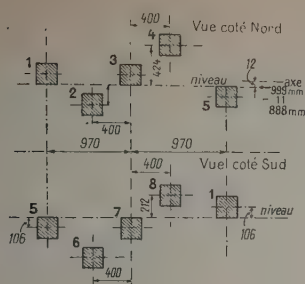


Fig. 1.

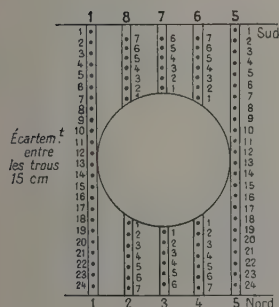


Fig. 2.

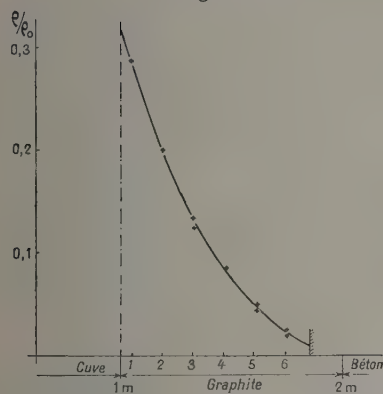


Fig. 3.

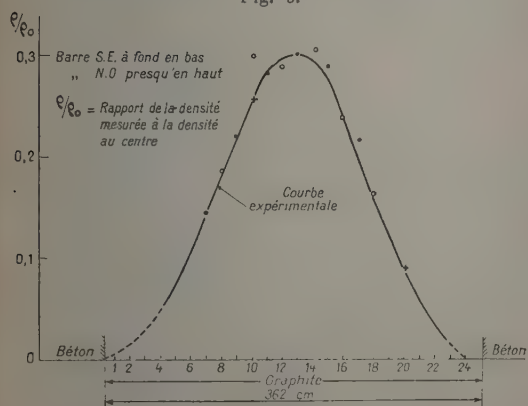


Fig. 4.

relevées comme nous l'avons indiqué, suffisent lorsqu'on utilise la pile comme source de neutrons,

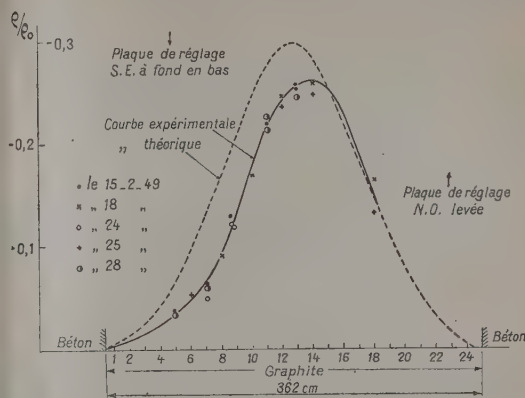


Fig. 5.

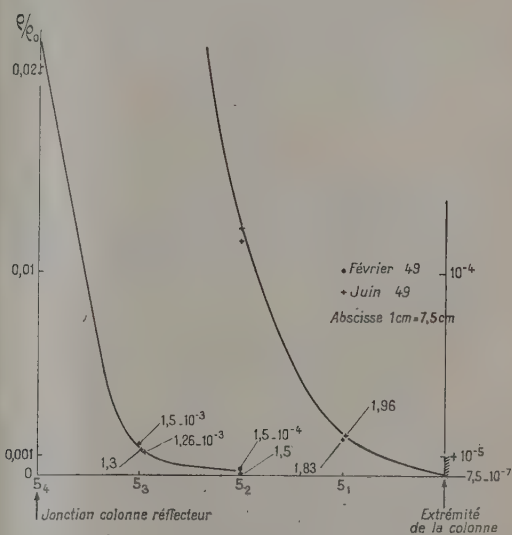


Fig. 6.

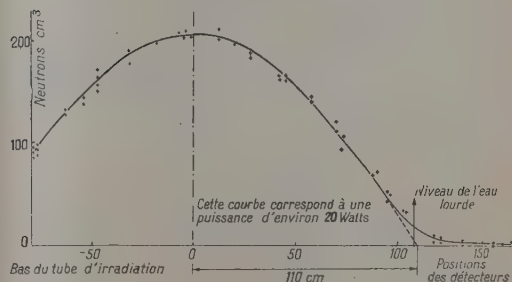


Fig. 7.

soit pour faire des expériences, soit pour la fabrication de radioéléments. On peut se contenter de graduer les appareils du tableau en flux de neutrons

au centre, par exemple, et l'on pourra en déduire immédiatement le flux de neutrons en un point de la pile dans les régions où les mesures de densité ont été faites.

On peut aussi chercher à caractériser la pile par sa puissance pour une valeur donnée du flux maximum et graduer les appareils en puissance.

On trouvera en annexe la relation entre la densité des neutrons et la puissance de la pile.

Détermination expérimentale du laplacien. —

Rappelons que dans la théorie de la diffusion des neutrons thermiques appliquée à un milieu multiplicateur, la solution de l'équation

$$\nabla^2 n + \chi^2 n = 0 \quad (1)$$

donne la distribution des neutrons. χ^2 est appelé le laplacien qui caractérise la pile. Le relevé des densités permet une détermination expérimentale de ce laplacien ⁽³⁾. L'équation précédente admet comme solution, dans le cas d'une pile cylindrique de rayon R et de hauteur H ,

$$n = n_0 J_0 \left(j_{0,1} \frac{r}{R} \right) \sin \left(\frac{\pi z}{H} \right),$$

J_0 étant la fonction de Bessel de première espèce et $j_{0,1}$ son premier zéro, R et H étant respectivement le rayon et la hauteur d'une pile nue ayant même laplacien que la pile réelle. Le laplacien est donné par

$$\chi^2 = \frac{j_{0,1}^2}{R^2} + \frac{\pi^2}{H^2}$$

en admettant que la répartition de densité dans la pile réelle est aussi représentée par le produit d'une fonction de Bessel et d'un sinus.

Le relevé expérimental de la densité de neutrons sur l'axe de la pile permet de vérifier que cette densité suit bien une loi en sinus. La figure 7 montre que H (hauteur de la pile nue correspondante) sera égale à 220 cm.

La disposition de la pile rend impossible le relevé de la densité suivant un rayon, mais on peut mesurer le rapport des densités au bord et au centre. Ce rapport est égal à 0,37. Le rayon de la pile nue correspondante sera donné par

$$0,37 = J_0 \left(j_{0,1} \frac{91}{R} \right),$$

soit $R = 125$ cm. D'où

$$\chi^2 = \left(\frac{2,405}{125} \right)^2 + \left(\frac{\pi}{220} \right)^2 \approx 5,8 \text{ m}^{-2}.$$

⁽³⁾ Cette méthode a été utilisée entre autres, par F. C. COLMER et D. J. LITTLER, *Nucleonics*, 1951, 8 (1), 3.

Ces mesures correspondent à une température moyenne de la pile de 40° C.

Nota. — On peut aussi déterminer le laplacien correspondant à une température différente en utilisant les résultats de l'étude cinétique de la pile ⁽⁴⁾.

ANNEXE.

Relation entre la densité des neutrons et la puissance de la pile. — La mesure de la densité des neutrons sur l'axe de la pile permet de relier la densité de neutrons au point de densité maximum, à la puissance dégagée par la pile. Nous donnons dans cette annexe le calcul qui conduit à cette correspondance.

Soit $\bar{n}_0(h)$ la densité moyenne de neutrons thermiques dans la section d'une barre d'oxyde d'uranium à la cote h (comptée à partir de la surface libre de l'eau lourde). Le nombre de fissions produites par seconde dans cette barre sera

$$F = \int_0^H \bar{n}_0(h) \sigma_f N_0 v S dh, \quad (1)$$

où

σ_f , section efficace de fission de l'U pour les neutrons thermiques;

N_0 , nombre de noyaux d'uranium par centimètre cube;

S , section de la barre d'oxyde d'uranium en centimètres carrés;

v , vitesse standard des neutrons ($v = 2\,200 \text{ m/s}$);

H , hauteur de la barre d'oxyde d'uranium immergée.

Si l'on appelle F_0 le nombre de fissions par seconde produites dans le barreau central supposé en place, on aura, pour un barreau dont l'axe sera situé à la distance r de celui du barreau central,

$$F_r = F_0 J_0 \left(j_{0,1} \frac{r}{R} \right), \quad (2)$$

J_0 étant la fonction de Bessel de première espèce, R le rayon de la pile nue, déjà déterminé expérimentalement lors du calcul du laplacien ($R = 125$ cm).

Il suffira pour avoir le nombre de fissions total correspondant à une densité moyenne $\bar{n}_0(h)$ dans la barre centrale, de calculer F_r pour chaque barre et de faire la somme des résultats obtenus.

En fait, la mesure possible à laquelle on peut relier le plus facilement la densité moyenne dans

⁽⁴⁾ A. ERTAUD, R. BEAUGÉ, H. FAUQUEZ et L. VAUTREY, *J. Physique Rad.*, 1951, 12, 17 A-25 A.

la barre d'oxyde d'uranium est la densité le long de cette barre. Nous emploierons la théorie élémentaire de la diffusion (voir, par exemple, A. M. Weinberg, rapport déclassé MDDC 1071).

Si \mathcal{C}_0 est l'inverse de la longueur de diffusion des neutrons thermiques dans l'oxyde d'uranium et si l'on admet que les sources sont réparties uniquement dans le ralentisseur, l'équation régissant la distribution des neutrons thermiques dans la barre sera

$$\nabla_{\bar{r}_0}^2 \mathcal{C}_0^2 n_0 = 0$$

dont la solution sera

$$n_0(r) = A_1 I_0(\mathcal{C}_0 r), \quad (3)$$

A_1 étant une constante et I_0 la fonction de Bessel de 2^e espèce. Posons $x = \mathcal{C}_0 a$, a étant le rayon de la barre d'oxyde d'uranium; si n_a est la densité le long de la barre, on a

$$A_1 = \frac{n_a}{I_0}(x) \quad (4)$$

et la densité moyenne dans une section droite de la barre sera donnée en fonction de la densité sur le bord par la formule suivante :

$$\bar{n}_0 = \frac{2 n_a I_1(x)}{x I_0(x)} \quad (5)$$

En fait, la densité a été mesurée sur la paroi externe d'un tube d'aluminium contenant l'oxyde d'uranium, soit n_A cette densité.

La condition de continuité du flux au contact aluminium-oxyde d'uranium permet, en admettant une variation linéaire de densité dans l'épaisseur du tube, d'écrire le rapport entre la densité n_A le long de la barre et la densité n_0 moyenne dans l'oxyde d'uranium, soit

$$\frac{n_A}{n_0} = \frac{x I_0(x)}{2 I_1(x)} + \frac{2 t \mathcal{C}_0}{2} \frac{I_{S_0}}{I_{S_1}} \quad (6)$$

(I_{S_1} et I_{S_0} étant respectivement les libres parcours moyens dans l'aluminium et dans l'oxyde d'uranium).

Le deuxième terme représente l'effet de l'aluminium.

Le calcul a été fait en adoptant les valeurs suivantes :

Section de capture (y compris la fission de l'U) : 7,2 barns (5);

Section de diffusion de l'uranium : 8,2 barns (5);
Section de diffusion de l'oxygène : 4,1 barns;
Section de capture de l'oxygène : 0,001 barn;
Densité de l'oxyde d'uranium : 8,3;
 a (rayon des pastilles d'uranium) : 3,3 cm;
 t (épaisseur de la gaine d'aluminium) : 0,16 cm.

On trouve ainsi

$$\frac{n_A}{n_0} = 1,17. \quad (7)$$

Nous pouvons alors écrire l'équation (1) sous la forme

$$F_0 = \int_0^H \frac{n_A(h)}{1,17} \sigma_f N_0 v S dh. \quad (8)$$

On peut admettre que la variation de $n_A(h)$ en fonction de h est la même que celle qui est relevée dans le tube central (courbe fig. 7) et se confond avec une portion de sinuséide dans la partie active de la pile. L'équation (8) donne alors une relation entre le nombre de fissions dégagé par seconde dans la barre centrale et la densité à un point quelconque de la surface de cette barre (densité maximum, par exemple).

De plus, la formule (2) permet de calculer le nombre de neutrons dégagés par seconde dans une barre quelconque pour une densité donnée sur la paroi de la barre centrale. Si l'on admet alors que $3,10^{10}$ fissions par seconde dégagent une puissance de 1 W, on pourra calculer facilement la densité maximum sur la paroi de la barre centrale correspondant à cette puissance. Le calcul fait en sommant sur toutes les barres donne pour la densité maximum sur la paroi de la barre centrale correspondant à une puissance de 1 W : 11,3 neutrons par centimètre cube.

Nous avons mesuré, au moyen d'un détecteur étalonné en densités absolues (voir au début), la densité maximum sur la paroi de la barre centrale, pour un certain niveau de puissance de la pile. En relevant, en même temps, l'indication de la chambre à trifluorure de bore qui sert à mesurer (en unités relatives) la puissance et en comparant les deux indications, nous arrivons à étalonner la chambre en unités de puissance.

Manuscrit reçu le 21 juillet 1951.

(5) *Atoms*, janv. 1951, p. 15.

ÉTUDE DES MODIFICATIONS ORDRE-DÉSORDRE DANS LES ALLIAGES BINAIRES.

Par GÉRARD FOURNET.

Division Rayons X de l'O.N.E.R.A. Conservatoire National des Arts et Métiers.

Sommaire. — En faisant un certain nombre d'hypothèses, Yvon a pu résoudre complètement le problème des transformations ordre-désordre; son résultat est donné sous la forme d'un développement;

Nous avons employé ce développement en nous limitant aux termes à deux et trois nœuds et faisant intervenir les énergies potentielles entre premiers et seconds voisins. Cette méthode nous a permis, dans le cas des alliages Cu-Zn, de retrouver avec une bonne approximation plusieurs résultats expérimentaux.

1. Introduction. — Les phénomènes ordre-désordre ont fait l'objet de nombreux travaux depuis le Mémoire classique de Bragg et Williams [1].

La théorie de ces phénomènes a fait ainsi des progrès et une des théories les plus connues est celle de Bethe [2] (pour Cu-Zn) et celle de Peierls [3] (pour Au-Cu₃).

Rappelons — selon Yvon [4] — les hypothèses simplificatrices qui ont permis d'édifier ces deux dernières théories :

1° La structure électronique du milieu n'est pas envisagée d'une manière explicite;

2° Le réseau est considéré comme rigide, indépendant de la température; les vibrations thermiques sont négligées;

3° Le seul phénomène d'agitation thermique dont il est alors tenu compte est la possibilité pour les atomes d'échanger leur position;

4° Les différentes probabilités que l'on peut avoir à calculer pour estimer l'état du réseau sont régies par la thermodynamique statistique classique;

5° Une seule donnée importe alors : c'est l'énergie potentielle qui est associée à une distribution microscopique quelconque.

Bethe admet que l'énergie potentielle totale est la somme des énergies mutuelles des atomes pris deux à deux; cette énergie mutuelle d'un couple d'atomes est nulle si les deux atomes ne sont pas proches voisins dans le réseau; au cas contraire, elle dépend seulement de leur nature.

Malgré la simplicité de ces hypothèses, le problème de statistique qu'il convient de résoudre est difficile; Bethe lui-même [2] n'en a fourni qu'une solution approchée et il a fallu attendre le Mémoire d'Yvon [4] pour en posséder la solution complète et exacte, solution fournie, il est vrai, sous forme de développement illimité.

2. Rappel de la théorie d'Yvon [4]. — Pour la généralité des raisonnements, Yvon suppose que chaque atome est soumis, en dehors des forces provenant d'actions interatomiques, à un champ de forces extérieures et note, par $U_{A,i}$ le potentiel correspondant pour un atome A sis au nœud i .

Sous les hypothèses précédentes (réseau parfait et rigide) et dans les alliages binaires [composés de N_A atomes A et N_B atomes B auxquels $N (=N_A + N_B)$ sites sont offerts], il suffit de déterminer la répartition des atomes d'une même espèce (A, par exemple) pour connaître en même temps la répartition des atomes B. Cette idée peut être précisée et exploitée théoriquement : le problème général de statistique que l'on s'est proposé (§ 1) se ramène alors au calcul de la répartition d'une seule espèce d'atomes (N_A atomes A auxquels N sites sont offerts), à condition de choisir pour énergie potentielle mutuelle W_{ij} d'un couple d'atomes en positions i et j

$$W_{ij} = W_{AA} + W_{ij}^{BB} - 2W_{ij}^{AB} \quad (1)$$

(où W_{AA} , par exemple, désigne l'énergie potentielle mutuelle d'un couple de deux atomes A en position i et j) et pour énergie provenant du champ de forces extérieures

$$U_i = U_{A,i} - U_{B,i} \quad (2)$$

Yvon ne cherche qu'à résoudre les problèmes de l'équilibre thermodynamique; nous n'ajoutons donc rien aux hypothèses précédentes en ne faisant dépendre W_{ij} que de la distance r_{ij} entre les deux atomes i et j du couple considéré (il n'en serait pas de même si nous considérions les phénomènes cinématiques, l'agitation « thermique » des atomes par exemple). La grandeur W_{ij} ne peut donc intervenir que par l'intermédiaire d'une série de valeurs :

$$W(r_1), \quad W(r_2), \quad \dots$$

(que nous noterons encore par $W_1, W_2, \dots, r_1, r_2, \dots$ correspondant aux distances entre premiers, seconds, etc. voisins dans le réseau considéré. Alors que Bethe supposait (après Bragg et Williams) que seul W_1 n'est pas nul, Yvon dans tous ses développements théoriques, suppose simplement que « l'énergie $W(r)$ s'annule quand la distance r surpasse un nombre assez petit d'inter-nœuds ».

Le problème de statistique qu'il s'agit maintenant de résoudre est analogue à celui que pose la théorie cinétique des fluides; grâce à certains de ses résultats [5] et [6] obtenus à partir de la formule de Boltzmann, on peut donc [4] immédiatement évaluer la probabilité $n_{i,A}(\vec{x}_i)$ de trouver un atome d'espèce A au nœud i défini par le vecteur \vec{x}_i , la probabilité $n_{2,AA}(\vec{x}_i, \vec{x}_j)$ de trouver à la fois un atome A au nœud i et un autre atome A au nœud j , la probabilité $n_{3,AAA}$, etc. Yvon obtient les logarithmes de ces différentes probabilités sous forme d'un développement en série. Le premier terme de la série correspondant à $n_1(\vec{x}_i)$ fait intervenir un ensemble de groupes de deux nœuds (l'un étant le nœud i , l'autre quelconque); le deuxième terme, un ensemble de groupes de trois nœuds (l'un étant le nœud i , les autres quelconques), etc. Les différents nœuds d'un même groupe peuvent être distincts ou confondus (les indices libres varient indépendamment).

Cette structure de la série laisse présager des calculs numériques pénibles; la meilleure preuve en est que des informations sur le seul nœud i considéré figurent dans chaque terme (dans le premier par le groupe ii , dans le deuxième par le groupe iii , etc.); de même que celles relatives au couple ij (dans le

premier terme par le groupe ij , dans le second, par les groupes ijj, iji, ijj, \dots).

Nous voyons ainsi l'intérêt que présente la transformation du développement actuel — dont les termes sont ordonnés par rapport au nombre de nœuds (distincts ou confondus) qu'ils font intervenir — en un autre développement où les termes seront ordonnés d'après le nombre de nœuds distincts qu'ils feront intervenir. (Les informations relatives au nœud isolé ne figureront que dans un seul terme, de même pour celles relatives au couple ij, \dots). Yvon a pu effectuer cette transformation et obtenir :

Équation en $n_{i,A}(\vec{x}_i)$ (désigné par abréviation par n_i) :

$$\frac{U_i}{kT} + \log \frac{n_i}{1 - n_i} + \sum_j \log A_{ij} + \sum_{j,k} \log A_{ijk} + \dots = f_i = \text{const.} \quad (3)$$

Cette équation signifie que la somme ci-dessus ne dépend pas du nœud i considéré.

Les expressions des termes A_{ij}, A_{ijk} peuvent évidemment se calculer à partir du développement précédent, mais Yvon indique un procédé beaucoup plus simple : l'expression de A_{ij} , par exemple, ne peut dépendre que de n_i, n_j et W_{ij} et il suffit donc de considérer un réseau ne comportant que deux nœuds i et j pour obtenir l'expression de A_{ij} en comparant, d'une part [cf. (3)],

$$\frac{U_i}{kT} + \log \frac{n_i}{1 - n_i} + \log A_{ij} = K$$

et, d'autre part, les résultats d'une statistique directe. Le résultat d'Yvon est

$$A_{ij} = \frac{n_i + n_j - 1 + w_{ij}(n_i - n_j) + \sqrt{(n_i + n_j - 1)^2 + 2w_{ij}(n_i + n_j - n_i^2 - n_j^2) + w_{ij}^2(n_i - n_j)^2}}{2w_{ij}n_i} \quad (4)$$

en posant

$$w_{ij} = e^{-\frac{W_{ij}}{kT}} \quad (5)$$

Équation en $n_{2,AA}(\vec{x}_i, \vec{x}_j)$ (abrégié en n_{ij})

$$\log n_{ij} = \log B_{ij} + \sum_k \log B_{ijk} + \sum_k \sum_l \log B_{ijkl} + \dots \quad (6)$$

L'expression de B_{ij} obtenue par Yvon est

$$B_{ij} = \frac{1 + (w_{ij} - 1)(n_i + n_j) - \sqrt{(n_i + n_j - 1)^2 + 2w_{ij}(n_i + n_j - n_i^2 - n_j^2) + w_{ij}^2(n_i - n_j)^2}}{2(w_{ij} - 1)} \quad (7)$$

3. Étude de l'ordre à grande distance. — Pour certains alliages binaires AB, les clichés de rayons X ont prouvé l'existence, au-dessous d'une certaine température T_c (température critique), d'un ordre à grande distance dans la répartition des atomes A (et B par conséquent). Nous envisagerons plus particulièrement les alliages Cu-Zn (laiton β équiatomique).

Le réseau est cubique centré. L'étude de la diffraction des rayons X par cet alliage montre, qu'au-dessous de la température critique, les nœuds peuvent se diviser par parties égales en deux groupes occupés préférentiellement, soit par les atomes A (Cu, par exemple) — ce sont les nœuds α —, soit par les atomes B (nœuds β).

Si l'on considère que l'un des groupes de nœuds

(α , par exemple), est identique à l'ensemble des sommets des cubes que l'on peut imaginer pour constituer le réseau cubique centré, le groupe β est l'ensemble des nœuds occupant le centre de ces cubes. L'ensemble des nœuds α est identique à celui des nœuds β à une translation près.

L'expérience montre, qu'à très basse température, tous les atomes A sont aux nœuds α , alors qu'au-dessus de la température critique, les atomes A se répartissent de façon moyenne sur les nœuds α et β . Il est donc possible d'écrire que

$$n_{1,A}(\alpha) = \frac{1}{2}(1+s); \quad (8)$$

s est le paramètre d'ordre à grande distance : sa valeur expérimentale varie depuis l'unité ($T = 0^\circ \text{K}$) jusqu'à zéro ($T \geq T_c$).

La relation (8) permet de déterminer $n_{1,A}(\beta)$, $n_{1,B}(\alpha)$ et $n_{1,B}(\beta)$ connaissant les proportions des atomes A et B et des nœuds α et β . Nous nous intéressons uniquement à la statistique des atomes A, aussi pouvons-nous poser sans risque de confusion

$$\left. \begin{aligned} n_\alpha &= n_{1,A}(\alpha) = \frac{1}{2}(1+s), \\ n_\beta &= n_{1,A}(\beta) = \frac{1}{2}(1-s). \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

L'équation de l'ordre à grande distance a pour but de fournir la relation $s = s(T)$.

Cette équation peut être obtenue [4] en considérant la relation (3) où l'on remplace successivement l'indice libre i par α , puis β et en écrivant

$$f_\alpha = f_\beta. \quad (10)$$

Nous voyons ainsi que la relation $s = s(T)$ dépend essentiellement de la structure mathématique de f_i .

Les termes du 1^{er} membre de (3) sont groupés en ne tenant compte que d'un seul critère : le nombre de nœuds qui interviennent dans l'écriture de chaque terme. Nous allons maintenant considérer un 2^e critère : les différentes énergies $W(r_1)$, $W(r_2)$, ... dont la connaissance est nécessaire pour le calcul de chaque terme. Les différents termes du 1^{er} membre de (3) peuvent donc être disposés maintenant dans un tableau : dans la première colonne, nous mettons les termes ne faisant intervenir qu'un seul nœud; dans la deuxième colonne, les termes ne faisant intervenir que deux nœuds, à l'exclusion des termes de la première colonne, etc.; dans la première ligne, nous mettons les termes ne faisant intervenir que $W(r_1)$, dans la deuxième ligne, les termes ne faisant intervenir que $W(r_1)$ et $W(r_2)$, à l'exclusion des termes de la première ligne, etc.

Le 1^{er} membre de (3) prend alors l'aspect ci-dessous (nous négligeons le terme en U_i) :

$$\begin{aligned} \log \frac{n_i}{1-n_i} &+ \sum_{j(r_1)} \log A_{ij}(r_1) + \sum \sum \log A_{ijk}(r_1, r_1, r_1) + \dots \\ &+ \sum_{j(r_2)} \log A_{ij}(r_2) + \sum \sum \dots \\ &+ \sum_{j(r_3)} \log A_{ij}(r_3) + \sum \sum \dots \end{aligned}$$

Le terme général est noté par $f_{pq,i}(r_p, q \text{ nœuds})$.

Ce tableau permet de faire l'historique des différentes théories fournissant l'ordre à grande distance; Bethe [2] ne considérait que les deux premiers termes de la première ligne f_{11} et f_{12} et l'équation correspondante de l'ordre à grande distance est

$$f_{11,\alpha} + f_{12,\alpha} = f_{11,\beta} + f_{12,\beta} \quad (\text{Bethe}). \quad (11)$$

On sait [7] que la théorie classique de Bragg et Williams revient à supposer que dans (11) le nombre de nœuds $j(r_1)$, situés à une distance r_1 du nœud considéré, est infini.

Dans ses développements numériques, Yvon, négligeant l'effet de $W(r_2)$, $W(r_3)$, ..., considère les termes à trois et quatre nœuds de la première ligne et son équation de l'ordre à grande distance est

$$\begin{aligned} f_{11,\alpha} + f_{12,\alpha} + f_{13,\alpha} + f_{14,\alpha} \\ = f_{11,\beta} + f_{12,\beta} + f_{13,\beta} + f_{14,\beta} \quad (\text{Yvon}). \end{aligned} \quad (12)$$

Les résultats d'Yvon sont assez peu différents de ceux de Bethe; l'accord avec l'expérience n'est pas toujours excellent.

Tous les développements numériques de l'équation de l'ordre à grande distance et les différentes théories (sauf celle d'Yvon) supposent que $W(r_2)$ et les autres termes de rang plus élevé des $W(r_i)$ sont nuls. Nous avons voulu nous affranchir de cette hypothèse; la comparaison des résultats d'Yvon et de Bethe nous a permis de négliger les termes à trois et quatre nœuds.

Nous examinerons d'abord uniquement le rôle de $W(r_2)$, de sorte que l'équation de l'ordre à grande distance devient

$$f_{11,\alpha} + f_{12,\alpha} + f_{22,\alpha} = f_{11,\beta} + f_{12,\beta} + f_{22,\beta}. \quad (13)$$

Dans le réseau cubique centré de CuZn, chaque nœud (α ou β) possède huit premiers voisins situés à une distance $r_1 = \frac{a\sqrt{3}}{2}$ (ces huit premiers voisins ont un indice commun β ou α , différent de celui de l'atome central), six deuxième voisins à une distance $r_2 = a$ (ces six deuxième voisins ont un indice commun α ou β identique à celui de l'atome central considéré).

Le calcul de $f_{11,\alpha}$ est immédiat, il suffit de rem-

placer, dans l'expression générale de $f_{11,i}$, n_i par n_α , car d'où

$$f_{11,\alpha} = \log \frac{1+s}{1-s}.$$

L'expression $f_{12,\alpha}$ se compose de huit termes identiques $\log A(r_1)$. Dans le calcul de ce terme [voir équ. (4)], il faut remplacer n_i par n_α , n_j (relatif au premier voisin du nœud α considéré) par n_β et w_{ij} par w_1 relatif à $W(r_1)$; nous pouvons résumer ces indications en écrivant

$$f_{12,\alpha} = 8 \log A_{\alpha\beta}(r_1).$$

Des transformations analogues permettent d'écrire maintenant l'équation de l'ordre à grande distance sous la forme

$$\begin{aligned} & \log \frac{1+s}{1-s} + 8 \log A_{\alpha\beta}(r_1) + 6 \log A_{\alpha\alpha}(r_2) \\ & = \log \frac{1-s}{1+s} + 8 \log A_{\beta\alpha}(r_1) + 6 \log A_{\beta\beta}(r_2), \end{aligned}$$

soit encore, tous calculs faits [10]

$$\begin{aligned} & \log \frac{\sqrt{\frac{1-s^2}{w_1} + s^2 + s}}{\sqrt{\frac{1-s^2}{w_1} + s^2 - s}} \\ & = \frac{3}{4} \log \frac{1+s}{1-s} - \frac{3}{4} \log \left[\frac{\sqrt{w_2(1-s^2) + s^2 + s}}{\sqrt{w_2(1-s^2) + s^2 - s}} \frac{1-s}{1+s} \right]. \quad (14) \end{aligned}$$

Si l'on suppose que W_2 est nul, w_2 devient égal à l'unité et le dernier terme de (14) disparaît; on retrouve ainsi l'équation de l'ordre à grande distance de la théorie de Bethe ou de la « quasi chemical method » de Fowler et Guggenheim (cf. équ. 1317 [7]). Nous désignerons par $w_{1,B}$ la solution de cette équation.

Pour étudier les modifications qu'apporte le terme en w_2 de l'équation (14), nous considérons d'abord le cas où $W_2 (= xW_1)$ est faible et, par conséquent, w_2 voisin de l'unité; si l'on pose

$$\frac{1}{w_1(s)} = \frac{1}{w_{1,B}(s)} [1 + \alpha]. \quad (15)$$

l'équation (14) peut s'écrire

$$-\frac{\alpha s}{\sqrt{\frac{1-s^2}{w_{1,B}(s)} + s^2}} + \dots = \frac{3}{4} (w_2 - 1) s + \dots, \quad (16)$$

soit

$$\alpha = -\frac{3}{4} (w_2 - 1) \sqrt{\frac{1-s^2}{w_{1,B}(s)} + s^2} + \dots$$

Remarquons que pour la température critique, $s=0$ et que, par conséquent,

$$\alpha_c = -\frac{3}{4} (w_2 - 1) \sqrt{\frac{1}{(w_{1,B})_c}} + \dots = -(w_2 - 1) + \dots,$$

$$\sqrt{(w_{1,B})_c} = \frac{3}{4}.$$

Le test classique de comparaison des différentes théories et des résultats expérimentaux est la courbe représentative de la fonction

$$s = f\left(\frac{T}{T_c}\right),$$

mais il est plus commode pour le calcul numérique de considérer la fonction inverse.

On peut, en effet, obtenir la valeur du rapport $\frac{T}{T_c}$ à partir de

$$\begin{aligned} \frac{T}{T_c} &= \frac{\log w_{1,c}}{\log w_1} = \frac{\log \frac{1}{w_{1,c}}}{\log \frac{1}{w_1}} = \frac{\log \frac{1}{(w_{1,B})_c} + \alpha_c + \dots}{\log \frac{1}{w_{1,B}} + \alpha + \dots}, \\ \frac{T}{T_c} &= \left(\frac{T}{T_c}\right)_{\text{Bethe}} \left[1 + \frac{\alpha_c}{\log \frac{1}{(w_{1,B})_c}} + \frac{\alpha}{\log \frac{1}{w_{1,B}}} + \dots \right], \end{aligned}$$

soit enfin, en remarquant que

$$w_2 = 1 + x \log w_1 + \dots = 1 + x \log w_{1,B} + \dots,$$

$$\begin{aligned} \frac{T(s)}{T_c} &= \left(\frac{T(s)}{T_c}\right)_{\text{Bethe}} \\ &\times \left[1 + x \left(1 - \frac{3}{4} \sqrt{\frac{1-s^2}{w_{1,B}(s)} + s^2} \right) + \dots \right]. \quad (17) \end{aligned}$$

Si l'on veut exprimer le terme correctif uniquement en fonction de s , il convient d'obtenir la valeur du radical à partir de l'équation (11) [c'est-à-dire (14) avec $w_2 = 1$]; on obtient ainsi

$$\begin{aligned} \frac{T(s)}{T_c} &= \left(\frac{T(s)}{T_c}\right)_{\text{Bethe}} \\ &\times \left[1 + x \left(1 - \frac{3}{4} s \frac{\left(\frac{1+s}{1-s}\right)^{\frac{3}{4}} + 1}{\left(\frac{1+s}{1-s}\right)^{\frac{3}{4}} - 1} \right) + \dots \right]. \quad (17 \text{ bis}) \end{aligned}$$

Le calcul montre alors que le coefficient de x est toujours positif et décroît régulièrement depuis $\frac{1}{4}$ ($s=1$, $T=\infty$) jusqu'à zéro ($s=0$, $T=T_c$).

Nous pouvons maintenant décrire très simplement les conséquences de nos hypothèses sur l'allure de la courbe représentative de l'ordre à grande distance en fonction de la température réduite $\frac{T}{T_c}$: si x est

positif, la courbe $s = f\left(\frac{T}{T_c}\right)$ est constamment plus éloignée de l'origine ($s=0$, $T=0$) que la courbe correspondante de la théorie de Bethe; c'est le contraire qui se produit quand x est négatif [cf. fig. 1 où les courbes $x=-0,2$, $x=0$ (Bethe)

et $x = 0,2$ ont été tracées grâce à l'approximation (17)].

ÉNERGIE LIBRE DE CONFIGURATION. — Si nous voulons étudier plus précisément, et pour des valeurs du rapport $\frac{W_2}{W_1}$ non très petites, l'influence de l'introduction du terme en w_2 dans l'équation de l'ordre à grande distance, il faut considérer la fonction représentative $F(s, T)$ de l'énergie libre de configuration. A la température T_0 , la matière tend à s'organiser de façon que $F(s, T_0)$ soit minimum et, par conséquent, l'équation déterminant les valeurs possibles de s (pour T_0) est :

$$\frac{\partial F}{\partial s}(s, T_0) = 0. \quad (18)$$

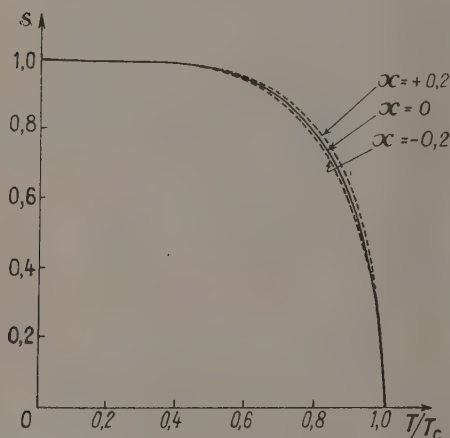


Fig. 1.

Nous avons indiqué « valeurs possibles », car il reste à choisir parmi les racines de (18) celle qui correspond au plus petit minimum de $F(s, T_0)$. Il est certain que toute équation de l'ordre à grande distance doit pouvoir s'identifier à l'équation (18) à cela près qu'un facteur et un terme additif (constants par rapport à s , mais qui peuvent être fonction de T) peuvent se trouver associés à $F(s, T_0)$.

L'équation de l'ordre à grande distance que nous avons établie (14) peut donc se mettre sous la forme

$$\frac{\partial H}{\partial s}(s, T) = 0,$$

où

$$H(s, T) = f_1(T) F(s, T) + f_2(T).$$

Nous pouvons donc déterminer la fonction $H(s, T)$ par

$$h(s, T) = H(s, T) - H(0, T) \\ = \int_0^s \left(\log \frac{x+s}{x-s} + \frac{3}{4} \log \frac{3+s}{3-s} - \frac{3}{2} \log \frac{1+s}{1-s} \right) ds,$$

avec

$$\alpha = \sqrt{\frac{1-s^2}{w_1} + s^2} \quad \text{et} \quad \beta = \sqrt{w_2(1-s^2) + s^2};$$

soit

$$h(s, T) = (1+s) \log \frac{\alpha+s}{1} + (1-s) \log \frac{\alpha-s}{1} \\ - 2 \log \frac{\alpha+1}{1} + \frac{3}{4} (1+s) \log \frac{3+s}{\sqrt{w_2}} \\ + \frac{3}{4} (1-s) \log \frac{3-s}{\sqrt{w_2}} - \frac{3}{2} \log \frac{\beta+1}{\sqrt{w_2}+1} \\ - \frac{3}{2} (1+s) \log (1+s) - \frac{3}{2} (1-s) \log (1-s). \quad (19)$$

En posant $w_2 = 1$, nous voyons que nous pouvons retrouver la fonction $F(s, T)$ de la « quasi chemical method » à condition d'écrire $f_1(T) \equiv 2NkT$ [7]; ceci confirme nos précédentes considérations.

Nous pourrions également déterminer $F(s, T)$ par un procédé analogue à celui de Fowler et Guggenheim en établissant au préalable (voir équ. (26)), l'expression de l'énergie moyenne de configuration.

Les extréma (et leur valeur relative) de $h(s, T_0)$ et de $F(s, T_0)$ sont identiques. L'étude de la fonction $h(s, T_0)$ peut donc suffire pour résoudre entièrement le problème de la détermination de l'ordre à grande distance à la température T_0 . Étudions d'abord quelques cas particuliers :

1° Pour s tendant vers zéro

$$h(s, T) = s^2 \left(\sqrt{w_1} + \frac{3}{4} \frac{1}{\sqrt{w_2}} - \frac{3}{2} \right) + s^4 + \dots \quad (20)$$

Pour connaître la concavité à l'origine de la fonction $h(s, T)$, faisons une étude auxiliaire de l'équation

$$0 = \sqrt{w_1} + \frac{3}{4} \frac{1}{\sqrt{w_2}} - \frac{3}{2}, \quad (21)$$

soit

$$f(y) = y + \frac{3}{4} - \frac{3}{2} = 0, \quad (21 \text{ bis})$$

avec $y = \sqrt{w_1}$.

Le seul domaine possédant une signification est $0 \leq y \leq 1$.

Nous devons distinguer trois possibilités :

a. $x \leq 0$; la courbe représentative de $f(y)$ coupe la droite d'ordonnée nulle en un point défini par

$$\frac{3}{4} \leq y_2 \equiv e^{-\frac{\mu_1}{2kT}} = \sqrt{w_1};$$

b. $0 < x < 0,40$; la fonction est négative entre deux points définis par y_1 et y_2 et compris entre 0 et $\frac{3}{4}$

$$0 < y_1 < y_2 < \frac{3}{4};$$

c. $x > 0,40$; la fonction $f(y)$ est constamment positive (voir fig. 2).

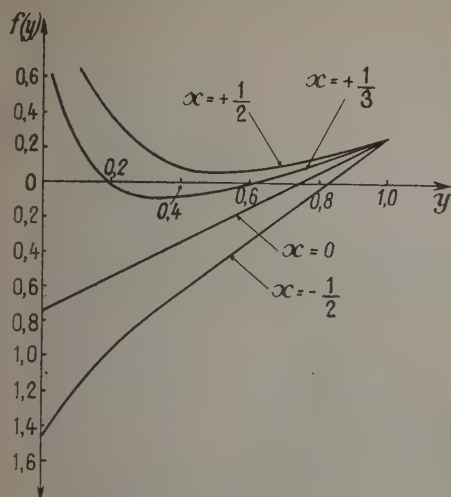


Fig. 2.

2° Pour s tendant vers l'unité

$$h(s, T) = \frac{1}{2} \log 2 + 2 \log \frac{1 + \frac{1}{\sqrt{w_1}}}{2} + \frac{3}{2} \log \frac{1 + \sqrt{w_2}}{2} - \frac{W_1}{kT} + \frac{3}{4} \frac{W_2}{kT} + \frac{s-1}{4} \left[-\log(1-s) + 1 + \log 2 - \frac{4W_1 - 3W_2}{kT} \right] + \dots \quad (22)$$

Cette expression montre que $\frac{\partial h}{\partial s}(1, T)$ est toujours positif.

3° Pour T tendant vers l'infini

$$h(s, \infty) = \frac{1}{4}(1-s) \log(1-s) + \frac{1}{4}(1+s) \log(1+s). \quad (23)$$

Nous pouvons maintenant décrire complètement l'aspect des courbes $s = f\left(\frac{T}{T_c}\right)$ (dans le seul domaine utile $0 \leq s \leq 1$). Nous ferons décroître T d'une valeur infinie au zéro absolu.

Premier cas, $x > 0,4$ (fig. 3). — La courbe $h(s, T)$ présente toujours un minimum à l'origine et ce minimum est le seul aux températures élevées. S'il apparaît un second minimum, on a obligatoirement un maximum entre ce minimum et celui de l'origine; l'équation (18) possède alors deux solutions non nulles. La transition entre ces deux types de courbes $h(s, T)$ ne peut se faire que par une

courbe (relative à une température T_1) toujours croissante, mais présentant une tangente d'inflexion horizontale; pour des températures T_2 légèrement inférieure à T_1 , le second minimum possède donc une ordonnée voisine de celle du point d'inflexion et, par conséquent, positive : la solution $s = 0$ est encore la solution stable. Il faut atteindre une température T_c pour que le second minimum (qui se produit alors pour $s = s_c$) de la fonction h soit nul. Pour des températures variant de T_c à zéro, s croît ensuite de s_c à l'unité. La température T_c , à partir de laquelle la solution $s = 0$ cesse d'être la solution stable, est la température critique.

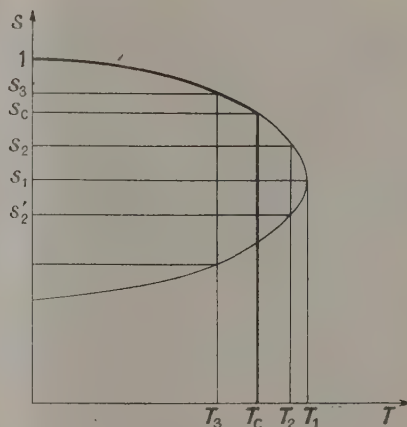
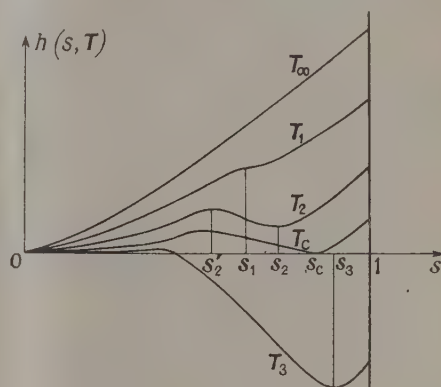


Fig. 3.

Deuxième cas, $0 < x < 0,4$. — Aux températures très élevées, la fonction $h(s)$ est toujours croissante [cf. (23)] et possède un minimum à l'origine. La solution $s = 0$ est donc la solution stable.

Nous devons ensuite distinguer deux cas :

a. $0 < x < 0,354$ (fig. 4).

Tant que $\sqrt{w_1}$ est supérieur à y_c ($T > T_c$), la courbe $h(s, T)$ est constamment croissante.

Pour $T < T_c$, la courbe représentative de $h(s, T)$ possède un maximum à l'origine; il y a donc au moins un minimum dans le domaine utile; le calcul

phénomènes de transformation ordre-désordre puissent prendre naissance] et que, par conséquent, le rapport x peut, lui aussi, être négatif.

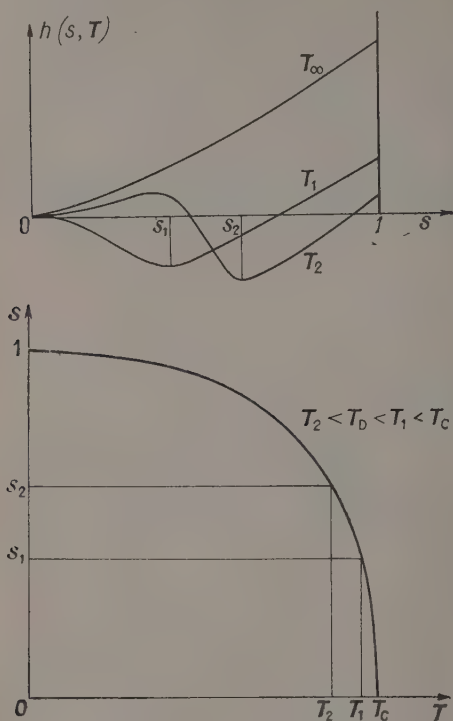


Fig. 4.

effectif montre qu'il n'y a qu'un minimum dans un large domaine de température, ce minimum fournit donc la solution. Il apparaît ainsi que T_c définit la température à partir de laquelle la solution $s = 0$ cesse d'être la solution stable. La température critique est donc T_c ; elle est déterminée par l'équation (21).

Pour des températures inférieures à T_b , il y a, de nouveau, un minimum à l'origine, mais le minimum minimorum est situé au voisinage de $s = 1$.

b. $0,354 < x < 0,40$ (fig. 5).

Pour une température T_1 , légèrement supérieure à T_c , la courbe $h(s, T)$ présente un point d'inflexion à tangente horizontale; une discussion calquée sur celle du premier cas fournit le même résultat quant à la courbe $s = f\left(\frac{T}{T_c}\right)$.

Troisième cas, $x < 0$. — Remarquons, au préalable, que l'énergie W_{ij} , définie par l'expression (1), peut prendre pour certaines valeurs de r_{ij} des valeurs négatives [La seule limitation dans ce sens réside dans le fait que l'énergie de configuration, voir expression (26), doit être positive pour que les

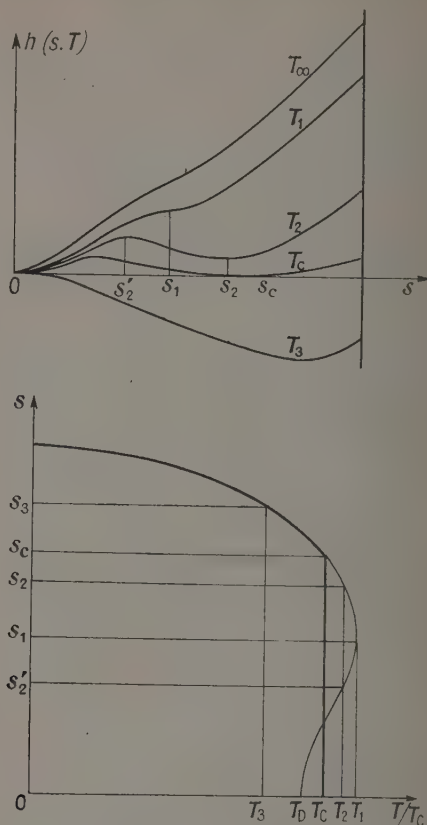


Fig. 5.

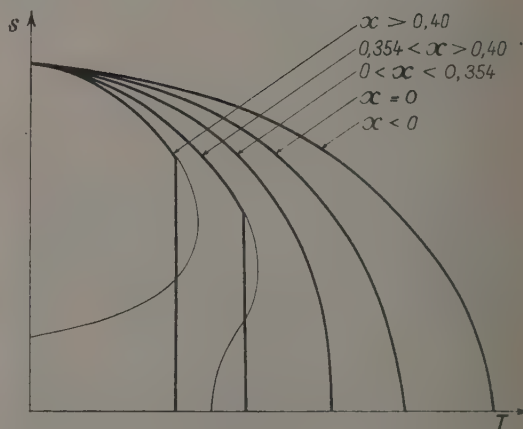


Fig. 6.

Dans le cas où x est négatif, l'évolution des courbes $h(s, T)$ est assez semblable à celle décrite dans le deuxième cas (a) à cela près que le troisième

genre de courbe (minimum à l'origine suivi d'un second minimum) n'est jamais atteint.

La température critique est déterminée par

$$\sqrt{w_{1,c}} = 1/2,$$

Sur la figure 6, nous avons représenté, de façon schématique, une famille de courbes $s = f(T)$ pour différentes valeurs du paramètre x .

DÉTERMINATION DU RAPPORT $\frac{W_2}{W_1}$. — Les déterminations expérimentales les plus récentes (Chipman et Warren [8]) de l'ordre à grande distance — effectuées pour diverses températures avec une bonne technique expérimentale (rayonnement filtré par double filtre de Ross, échantillon constitué d'un monocristal, emploi d'un compteur de Geiger-Müller), à partir de la mesure de l'intensité de diffraction sur les plans [1.0.0] — montrent qu'il convient d'adopter une valeur de x positive et relativement grande (mais, toutefois, inférieure à 0,4); l'approximation (17) n'est donc plus valable, aussi avons-nous employé l'équation complète, avec nos hypothèses, (14).

La méthode de calcul est simple : pour une valeur de s fixée, on détermine par approximations successives la valeur de w_1 ; à chaque valeur de x correspond évidemment une courbe $s = f\left(\frac{T}{T_c}\right)$.

Sur le tableau ci-dessous, nous avons porté en fonction de s , les valeurs de $\frac{T}{T_c}$ (Bethe), de $\frac{T}{T_c}$ multiplié par le coefficient de x , dans (17), des valeurs de $\frac{T}{T_c}$ [(14) avec $x = \frac{1}{3}$], des valeurs de $\frac{T}{T_c}$ expérimentales [8].

L'accord est excellent entre la courbe $x = \frac{1}{3}$ et les déterminations expérimentales.

Sur la figure 7, nous avons représenté les points expérimentaux de Chipman et Warren et les différentes courbes théoriques de Bragg et Williams [1], Bethe [2], du présent Mémoire ($x = \frac{1}{3}$), ainsi que celle de Cowley [9].

Les fondements physiques du travail de Cowley sont les mêmes que ceux de l'article d'Yvon; mais Cowley fait immédiatement des simplifications

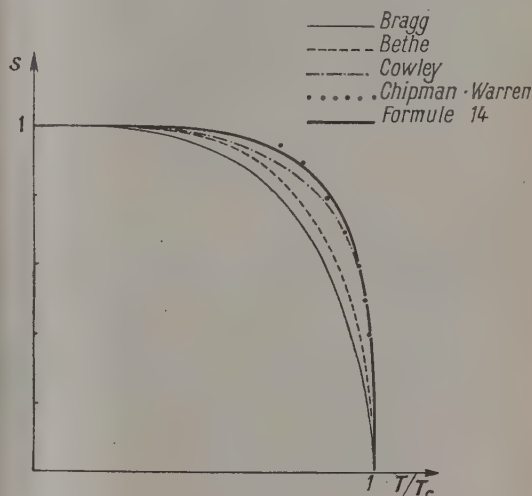


Fig. 7.

mathématiques (par exemple, ses variables α_i [9] sont supposées être indépendantes), de sorte qu'il est difficile de préciser le domaine de validité et la signification physique exacte de cette théorie.

CHALEUR SPÉCIFIQUE. — Une des manifestations les plus remarquables des alliages donnant lieu aux modifications ordre-désordre est l'anomalie que

s	$\frac{T}{T_c}$ (Bethe).	$\left(\frac{T}{T_c}\right)_{\text{Bethe}} \cdot \left(1 - \frac{3}{4} \frac{\left(\frac{1+s}{1-s}\right)^{\frac{1}{2}} + 1}{\left(\frac{1+s}{1-s}\right)^{\frac{1}{2}} - 1}\right)$	$\frac{T}{T_c} \left(x = \frac{1}{3}\right)$	$\frac{T}{T_c}$ exp. [8].
1,00	0,000	0,000	0,000	0,000
0,98	0,483	-	-	-
0,97	0,522	-	-	-
0,95	0,577	-	0,689	0,727
0,93	0,620	-	-	-
0,90	0,668	0,106	0,780	0,790
0,80	0,776	0,089	0,875	0,865
0,70	0,845	0,069	0,926	0,919
0,60	0,894	0,051	0,956	0,953
0,50	0,930	0,037	0,975	0,973
0,40	0,957	0,023	0,987	0,984
0,30	0,977	0,015	-	-
0,20	0,990	0,005	-	-
0,10	0,997	-	-	-
0,00	1,000	0,000	1,000	1,000

présente leur chaleur spécifique au voisinage de la température critique.

La quantité de chaleur que l'on fournit à un tel alliage sert, en effet, en partie, à modifier l'énergie potentielle des atomes en modifiant leurs position et, par conséquent, le nombre des couples formés de deux atomes d'espèce A et B à une distance r . Nous nous intéressons uniquement à la partie de l'énergie, et donc à la composante de la chaleur spécifique, liée à cette répartition des atomes. Dans le schéma d'Yvon où l'on ne considère que les N_A atomes d'espèce A auxquels les N places sont offerts, l'énergie en question est définie par [4]

$$E = \frac{1}{2} \sum_i \sum_j W_{ij},$$

où la sommation est évidemment étendue aux seuls nœuds occupés par des atomes d'espèce A et où W_{ij} est défini par (1).

Dans le cas où le morceau de métal étudié est grand (devant les dimensions atomiques), on peut négliger les effets de bords et écrire que la deuxième sommation (par rapport à i) peut être remplacée par une simple multiplication de

$$\overline{\sum_j W_{ij}}, \quad (24)$$

moyenne des énergies potentielles dans lesquelles est engagé un nœud quelconque i du réseau, par le nombre N des nœuds

$$E = \frac{1}{2} N \sum_j W_{ij} = \frac{1}{2} N \sum_j W(r_j). \quad (24 \text{ bis})$$

L'évaluation de (24) fait intervenir W_1 et W_2 ; le coefficient de W_1 est déterminé de la façon suivante :

$$B_{\alpha\beta}(r_1) = \frac{1 + (\omega_1 - 1)(n_\alpha + n_\beta) - \sqrt{(n_\alpha - n_\beta - 1)^2 + 2\omega_1(n_\alpha + n_\beta - n_\alpha^2 - n_\beta^2)} + \omega_1^2(n_\alpha - n_\beta)^2}{2(\omega_1 - 1)};$$

nous avons donné précédemment les expressions de

$$n_\alpha = \frac{1}{2}(1 + s),$$

$$n_\beta = \frac{1}{2}(1 - s);$$

on obtient ainsi, tous calculs faits,

$$B_{\alpha\beta}(r_1) = \frac{\omega_1 - \sqrt{\omega_1(1 - s^2) + \omega_1^2 s^2}}{2(\omega_1 - 1)}.$$

il y a autour d'un nœud α (la probabilité pour qu'un nœud soit un nœud α est 0,5) huit nœuds β ; la contribution d'un nœud α au coefficient de W_1 est donc

$$0,5 \cdot 8 \cdot n_{\alpha\beta}(r_1);$$

dé même, la contribution d'un nœud β

$$0,5 \cdot 8 \cdot n_{\beta\alpha}(r_1).$$

Rappelons que nous nous intéressons uniquement à la statistique des atomes A et que $n_{\alpha\beta}(r_{ij})$ désigne la probabilité de trouver à la fois un atome A au nœud i (de nature α) et un autre atome A au nœud j (de nature β), probabilité que nous devrions noter de la façon complète par $n_{\alpha\beta}[\vec{x}_i(\alpha), \vec{x}_j(\beta)]$; la notation $n_{\alpha\beta}(r_{ij})$ ne prête donc pas à confusion

$$(r_{ij} = |\vec{x}_i - \vec{x}_j|).$$

Il existe six nœuds à la distance r_2 d'un nœud quelconque, ces sept nœuds sont tous de même nature. Nous pouvons donc écrire, sans détailler, le calcul du coefficient de W_2

$$\begin{aligned} \overline{\sum_j W(r_j)} = & W_1 \left[\frac{1}{2} 8 n_{\alpha\beta}(r_1) + \frac{1}{2} 8 n_{\beta\alpha}(r_1) \right] \\ & + W_2 \left[\frac{1}{2} 6 n_{\alpha\alpha}(r_2) + \frac{1}{2} 6 n_{\beta\beta}(r_2) \right]. \quad (25) \end{aligned}$$

Les expressions des $n_{\alpha\beta}(r_i)$ sont fournies [4] par l'expression (6). Nous négligerons tous les termes B_{ijkl} , B_{ijkl} , ..., puisque nous avons négligé dans le calcul des n_α les termes en A_{ijk} , A_{ijk} , ...; nous obtenons donc

$$n_{\alpha\beta}(r_j) = B_{\alpha\beta}(r_j),$$

où $B_{\alpha\beta}(r_j)$ est défini par (7); nous donnons, à titre d'exemple, le calcul de $B_{\alpha\beta}(r_1)$

Grâce à des calculs analogues, l'énergie de configuration peut s'exprimer par [10]

$$E = \frac{1}{2} N \left[8 \frac{\omega_1 - \sqrt{\omega_1(1 - s^2) + \omega_1^2 s^2}}{2(\omega_1 - 1)} W_1 + 6 \frac{\omega_2 - \sqrt{s^2 + \omega_2(1 - s^2)}}{2(\omega_2 - 1)} W_2 \right]. \quad (26)$$

Si l'on veut calculer la chaleur spécifique de configuration que l'expérience permet d'atteindre (voir [7] et [11]), il suffit de dériver E par rapport

à T ; dans l'expression de E , les variables dépendant de la température sont w_1 , w_2 et s .

Le calcul général est pénible par cette méthode et nous nous bornerons à calculer la chaleur spécifique pour une température $T_c - 0$ immédiatement inférieure à la température critique.

Le paramètre s a une valeur positive très petite et nous pouvons développer l'énergie de configuration (22) en fonction de s

$$\begin{aligned} \frac{E}{N} &= \left[\frac{2\sqrt{w_1}}{\sqrt{w_1+1}} W_1 + \frac{3}{2} \frac{\sqrt{w_2}}{\sqrt{w_2+1}} W_2 \right] \\ &+ s^2 \left[-\sqrt{w_1} W_1 + \frac{3}{4} \frac{1}{\sqrt{w_2}} W_2 \right] + \dots \\ &\equiv [u] + s^2[v] + \dots \end{aligned} \quad (27)$$

Effectuons maintenant le même travail sur l'équation de l'ordre à grande distance (14)

$$\begin{aligned} 0 &= 2s \left[\sqrt{w_1} - \frac{3}{2} + \frac{3}{4} \frac{1}{\sqrt{w_2}} \right] \\ &+ 2s^3 \left[\frac{\sqrt{w_1}(3-w_1)}{6} - \frac{1}{2} + \frac{3}{4} \frac{3w_2-1}{6w_2\sqrt{w_2}} \right] + \dots \quad (28) \\ &\equiv 2s[r] + 2s^3[t] + \dots \quad (28 \text{ bis}) \end{aligned}$$

Si l'on élimine la solution permanente $s = 0$, on obtient

$$0 = r + s^2 t - \dots \quad (29)$$

Les notations s^2 sont alors identiques dans les équations (27) et (28). On peut remarquer que bien évidemment $r = 0$ fournit l'équation régissant la température critique. En dérivant (29) par rapport à T , on obtient

$$0 = \frac{\partial r}{\partial T} + t \frac{\partial s^2}{\partial T} + s^2 \frac{\partial t}{\partial T} + \dots,$$

soit encore

$$\frac{\partial s^2}{\partial T} = -\frac{1}{t} \frac{\partial r}{\partial T} + \dots$$

On peut maintenant calculer la chaleur spécifique de configuration par atome

$$C = \frac{\partial}{\partial T} \left(\frac{E}{N} \right) = \frac{\partial u}{\partial T} + v \frac{\partial s^2}{\partial T} + \dots = \frac{\partial u}{\partial T} - \frac{v}{t} \frac{\partial r}{\partial T} + \dots$$

Si on limite le développement de C aux seuls termes écrits ci-dessus, on obtient la chaleur spécifique pour une température juste inférieure à la température critique C_{T_c-0} . Les calculs donnent

$$\begin{aligned} \frac{\partial u}{\partial T} &= \frac{k}{4} \left[\frac{4\sqrt{w_1}}{(\sqrt{w_1+1})^2} \frac{W_1^2}{k^2 T^2} + \frac{3\sqrt{w_2}}{(\sqrt{w_2+1})^2} \frac{W_2^2}{k^2 T^2} \right], \\ \frac{\partial r}{\partial T} &= \frac{2k}{4k^2 T^2} \left[\sqrt{w_1} W_1 - \frac{3}{4} \frac{1}{\sqrt{w_2}} W_2 \right], \end{aligned}$$

d'où

$$\begin{aligned} \frac{C_{T_c-0}}{k} &= \frac{W_1^2}{4k^2 T^2} \left[\frac{\frac{1}{w_1+1}}{\left(\frac{1}{w_1+1}+1\right)^2} + \frac{3x^2 \frac{x}{w_1+1}}{\left(\frac{x}{w_1+1}+1\right)^2} \right. \\ &\quad \left. + \frac{2\left(\frac{1}{w_1+1} - \frac{3}{4} \frac{x}{w_1+1} x\right)^2}{\frac{w_1^2(3-w_1)}{6} - \frac{1}{2} - \frac{1}{8} \frac{3w_1^2-1}{\frac{3x}{w_1+1}}} \right] ; \quad (30) \end{aligned}$$

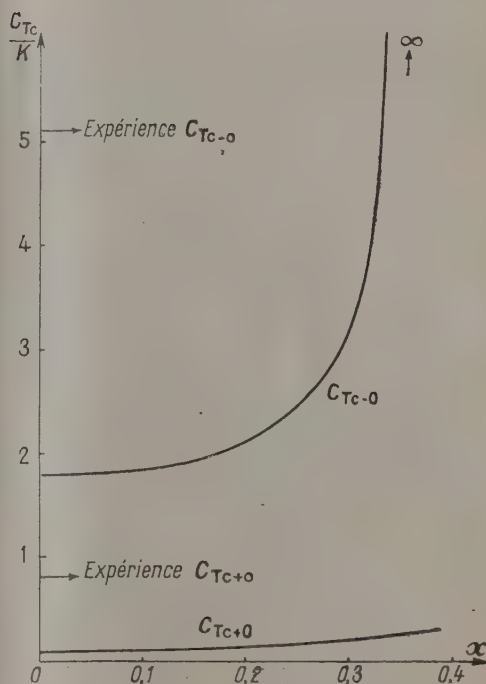


Fig. 8.

dans cette expression, les quantités T et w_1 doivent être considérées à leur valeur critique; la quantité $\frac{W_1}{kT_c}$ s'obtient facilement en résolvant l'équation (21). Pour la valeur déjà considérée $\left(\frac{1}{3}\right)$ du paramètre, on obtient $C_{T_c-0} = 5,80 k$.

Il y a bon accord, puisque la valeur expérimentale [11] est $5,1 k$, alors que la théorie de Bethe fournissait $1,78$ et celle de Cowley une valeur infinie.

Nous avons étudié la courbe de variation de $\frac{C_{T_c-0}}{k}$

en fonction de x . Pour les petites valeurs de x , un développement en série fournit

$$\begin{aligned} \frac{C_{T_c-0}}{k} &= \left(\log_e \frac{4}{3} \right)^2 (1+x) \\ &\times \left[\frac{48}{49} \left(1 + \frac{x \log_e \frac{9}{16}}{14} \right) \right. \\ &\quad \left. + \frac{21.48}{49} \left(1 - 2x - \frac{x}{2} \log_e \frac{9}{16} \right) \dots \right] \\ &= \left(\log_e \frac{4}{3} \right)^2 \frac{22.48}{49} \left[1 - \frac{73}{154} x \log_e \frac{9}{16} - \frac{10}{11} x + \dots \right], \end{aligned}$$

soit encore

$$\frac{C_{T_c-0}}{k} = 1,78 - 1,13x + \dots$$

Nous avons tracé la courbe complète de variations grâce aux valeurs suivantes :

x	$\frac{W_1}{k T_c}$	$\frac{C_{T_c-0}}{k}$	$\frac{C_{T_c+0}}{k}$
0 (Bethe).....	0,575	1,78	0,081
0,200.....	0,734	2,09	0,134
0,300.....	0,878	3,12	0,196
$\frac{1}{3}$	0,953	5,80	0,233
0,350.....	1,000	28,5	0,258
0,354.....	1,014	∞	0,264

Remarquons que la valeur singulière 0,354 — qui a figuré dans une précédente discussion — est celle qui annule le coefficient t [voir (28 bis)].

L'aspect de la courbe (fig. 8) montre que la valeur expérimentale 5,1 correspond à la valeur 0,330 du paramètre x . Pour une telle valeur, la courbe $s = s\left(\frac{T}{T_c}\right)$ serait pratiquement la même que celle relative à $x = \frac{1}{3}$.

Au-dessus de la température critique, l'ordre à grande distance est identiquement nul. En considérant à nouveau la suite des calculs qui nous ont mené à l'expression (26), nous obtenons, pour énergie de configuration au-dessus de la température critique

$$\frac{E}{N} = \frac{1}{2} \left[8 \frac{w_1 - \sqrt{w_1}}{2(w_1 - 1)} W_1 + 6 \frac{w_2 - \sqrt{w_2}}{2(w_2 - 1)} W_2 \right] \quad (31)$$

et pour la chaleur spécifique dans ce domaine

$$\frac{C}{k} = \frac{W_1^2}{4k^2 T^2} \left[\frac{4w_1^{\frac{1}{2}}}{\left(\frac{1}{w_1^{\frac{1}{2}}} + 1\right)^2} + \frac{3x^2 w_1^{\frac{x}{2}}}{\left(\frac{x}{w_2^{\frac{x}{2}}} + 1\right)^2} \right]. \quad (32)$$

Sur le tableau précédent, nous avons indiqué les valeurs de C_{T_c+0} obtenues au moyen de (32) avec $w_1 = w_{1c}$. L'accord avec la valeur expérimentale (0,8) [4] n'est pas bon, mais il est moins mauvais qu'avec la théorie de Bethe.

Conclusion. — Nous avons montré comment on peut appliquer la théorie d'Yvon en tenant compte explicitement de l'énergie potentielle entre seconds voisins. Il est intéressant de remarquer que l'on peut passer des courbes $s = f\left(\frac{T}{T_c}\right)$ sans discontinuité (fig. 4) à des courbes présentant une discontinuité (fig. 3 et 5).

Dans l'alliage CuZn, l'hypothèse $\frac{W_2}{W_1} = \frac{1}{3}$ rend bien compte des faits.

Nous sommes heureux de remercier M. le Professeur Guinier pour de nombreuses discussions.

Manuscrit reçu le 20 octobre 1951.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] BRAGG W. L. et WILLIAM E. J. — *Proc. Roy. Soc.*, 1934, **145** A, 699 et 1935, **151** A, 540.
- [2] BETHE H. A. — *Proc. Roy. Soc.*, 1935, **150** A, 552.
- [3] PEIERLS R. — *Proc. Roy. Soc.*, 1936, **154** A, 207.
- [4] YVON J. — *Cahiers de Physique*, 1945, **28**, 1.
- [5] YVON J. — *Actualités scientifiques*, Hermann, Paris, n° 203.
- [6] YVON J. — *Actualités scientifiques*, Hermann, Paris, n° 542 et 543.
- [7] FOWLER R. H. et GUGGENHEIM M. A. — *Statistical Thermodynamics*, University Press, Cambridge, 1939.
- [8] CHIPMAN et WARREN. — *J. Appl. Phys.*, 1950, **21**, 696.
- [9] COWLEY J. M. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 669.
- [10] FOURNET G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 155.
- [11] NIX F. C. et SHOCKLEY W. — *Rev. Mod. Phys.*, 1938, **10**, 1.

REMARQUES SUR L'APPLICATION DU CALCUL MATRICIEL AUX SYSTÈMES A RÉACTION LINÉAIRES ET PSEUDOLINÉAIRES.

Par JEAN SALMON.

Laboratoire de Physique atomique et moléculaire du Collège de France.

Sommaire. — L'auteur exprime la condition d'entrée en oscillations d'un système à réaction linéaire en écrivant que le nombre 1 est valeur propre d'une matrice, puis il cherche à étendre ce résultat à certains systèmes non linéaires.

1. Systèmes linéaires. — Nous avons représenté schématiquement ci-dessous (fig. 1) un système à réaction par ses trois organes principaux T_1 (chaîne directe), T_2 (chaîne inverse), T_d (organe de comparaison) (1).

A ces quadripôles, nous associons leurs matrices caractéristiques respectives T_1 , T_2 , T_d dont les éléments sont en langage du calcul opérationnel des fractions rationnelles de la variable p .

D'autre part, aux différents signaux e , u , s , s' , nous faisons correspondre les vecteurs \vec{e} , \vec{u} , \vec{s} , $\vec{s'}$ dont les composantes sont les transformées de Laplace des grandeurs en jeu.

Des équations

$$\vec{u} = T_1 \vec{s}, \quad \vec{s} = T_2 \vec{s'}, \quad \vec{s'} = T_d \vec{u}, \quad (1)$$

nous déduisons la condition d'entrée en oscillations

$$\vec{u} = T_1 T_2 T_d \vec{u} \quad (2)$$

exprimant que le signal ramené par T_d est le même que le signal injecté dans T_1 .

Si T est la matrice relative à l'ensemble de la chaîne et définie par

$$T = T_1 T_2 T_d = \begin{vmatrix} a & b \\ c & d \end{vmatrix}, \quad (3)$$

l'équation (2) exprime que 1 est une valeur propre de T , ce qui nous donne

$$1 + ad - bc - (a + d) = 0, \quad (4)$$

et l'on retrouve l'équation bien connue

$$1 + Y(p) = 0, \quad (5)$$

où $Y(p)$ est la fraction rationnelle en p représentant le rapport de transmission de toute la chaîne.

(1) En l'absence de signal extérieur, l'organe de comparaison peut être considéré comme un quadripôle.

Mais dans (4) figure avec $(ad - bc)$ le déterminant de T ; lui-même produit des déterminants de toutes les matrices en jeu.

Il vient

$$1 - (a + d) + \prod_1^n [\text{dét. de } T_n] = 0. \quad (6)$$

Dans les applications, les déterminants des matrices T prennent souvent des valeurs intéressantes comme 1 pour un quadripôle passif ou 0 pour un quadripôle non réversible (matrice non

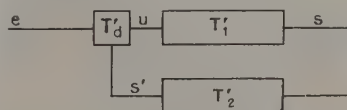


Fig. 1.

régulière associée à un tube à vide fonctionnant sans couplage grille-plaque).

Dans ce dernier cas, l'équation (4) devient

$$1 - (a + d) = 0. \quad (7)$$

De plus, si l'attaque de T_1 se fait sur une lampe fonctionnant dans les conditions indiquées plus haut, la première matrice à considérer τ sera de la forme

$$\tau = \frac{1}{\mu} \begin{vmatrix} 1 & \rho \\ 0 & 0 \end{vmatrix},$$

μ , coefficient d'amplification du tube;

ρ , résistance interne du tube.

T , sera du type

$$T = \begin{vmatrix} a & b \\ 0 & 0 \end{vmatrix},$$

puisque le produit de τ par une matrice quelconque donne une matrice dont les éléments de la seconde

ligne sont nuls. L'équation (4) prend la forme simple

$$1 - \alpha = 0. \quad (8)$$

Prenons comme exemple (fig. 2) un oscillateur usuel, le Colpitts; la matrice T s'écrit

$$T = -\frac{1}{\mu} \begin{vmatrix} 1 + p c_2 (r + L p) & \rho [1 + p c_2 (r + L p)] \\ + \rho [p (c_1 + c_2) & + r + L p \\ + p^2 c_1 c_2 (r + L p)] & \\ 0 & 0 \end{vmatrix},$$

ce qui donne, pour $1 + Y(p) = 0$:

$$1 + Y(p) = p^3 L \rho c_1 c_2 + p [\rho (c_1 + c_2) + r c_2] + p^2 c_2 (L + r \rho c_1) - \mu + 1 = 0. \quad (9)$$

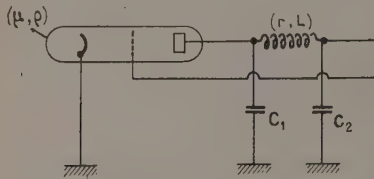


Fig. 2.

2. **Systèmes pseudolinéaires.** — Le numérateur de $1 + Y(p)$ est un polynôme de la forme

$$\rho_n = \sum_{n=0}^n a_n p^n, \quad (10)$$

et les racines de l'équation

$$\rho_n = 0 \quad (11)$$

correspondent à des oscillations croissantes, décroissantes ou entretenues, selon que leur partie réelle est positive, négative ou nulle.

Dans ce dernier cas, la présence d'une racine imaginaire pure $j\omega$ conduit, en écrivant ρ_n sous la forme

$$\rho_n = \sum_{m=0}^m (-1)^m a_{2m} \omega^{2m} + j\omega \sum_{m=0}^m (-1)^m a_{2m+1} \omega^{2m}, \quad (12)$$

au système

$$a_0 - a_2 x - \dots + (-1)^m a_{2m} x^m = 0, \quad (13)$$

$$a_1 - a_3 x - \dots + (-1)^m a_{2m+1} x^m = 0, \quad (14)$$

avec

$$x = \omega^2.$$

Ces deux équations doivent posséder une racine réelle, positive et commune, ce qui exige, entre autres conditions, que le résultant R de (13) et (14) soit nul.

A toute racine de (11) à partie réelle positive, correspondent des oscillations d'amplitude croissante, ce qui n'a pas de sens physique puisque, en quelque point de la chaîne, se trouve certainement

un organe limiteur et, par conséquent, non linéaire.

Le problème devient alors beaucoup plus difficile. Néanmoins, nous examinerons une classe importante d'appareils pour lesquels il est encore possible de définir une matrice caractéristique.

Nous supposons que l'organe limiteur satisfait aux deux conditions suivantes [2] :

1° Il possède un niveau de sortie qui ne peut dépasser une certaine valeur;

2° Il n'introduit pas d'harmoniques lorsqu'il est attaqué par un signal de fréquence donnée.

On se rapproche de ces conditions idéales avec un amplificateur sélectif ou avec un moteur sensible seulement à la composante fondamentale de sa tension d'alimentation.

La figure 3 donne une courbe de réponse-type de tels organes :

$$\text{tg } \varphi = G = \frac{\sigma}{h},$$

h , amplitude de la zone linéaire;

G , gain dans la zone linéaire;

σ , niveau de sortie maximum.

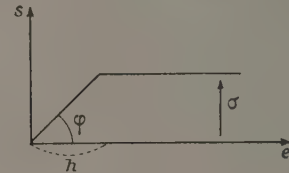


Fig. 3.

Le fondamental du signal de sortie a pour amplitude Δs donnée par l'intégrale

$$\Delta s = \frac{4}{\pi} \left[\int_0^{\theta_1} G \Delta e \sin^2 \theta d\theta + \int_{\theta_1}^{\frac{\pi}{2}} G h \sin \theta d\theta \right], \quad (15)$$

Δe désignant l'amplitude du signal sinusoïdal d'entrée.

On a posé

$$\theta = \omega t, \quad (16)$$

$$\sin \theta_1 = \frac{h}{\Delta e}, \quad (17)$$

θ_1 définissant la fraction de quart de période pendant laquelle on se trouve dans la zone linéaire.

Il vient, tous calculs faits,

$$A = \frac{\Delta s}{\Delta e} = \frac{4G}{\pi} \left(\frac{\theta_1 + \sin \theta_1 \cos \theta_1}{2} \right). \quad (18)$$

La relation (18) définit un pseudo-rapport de transmission A qui dépend de Δe contrairement au cas d'un système linéaire.

Si l'on remplace la courbe de la figure 3 par celle de la figure 4 dont l'équation est donnée par le développement en série

$$s = \sum x_n e^n,$$

on trouve

$$A = \frac{\Delta s}{\Delta e} = x_1 + \frac{3}{4} x_3 (\Delta e)^2 + \dots \quad (19)$$

Il est alors possible d'introduire, dans certains

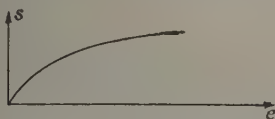


Fig. 4.

éléments de la matrice associée à l'organe limiteur, des expressions du genre (18).

Pour un tube à vide, la matrice

$$L = -\frac{1}{\mu} \begin{vmatrix} 1 & \rho \\ 0 & 0 \end{vmatrix} \quad (20)$$

deviendra, avec les hypothèses faites plus haut,

$$L' = -\frac{1}{\frac{4\mu}{\pi} \left(\frac{\theta_1 + \sin \theta_1 \cos \theta_1}{2} \right)} \begin{vmatrix} 1 & \rho \\ 0 & 0 \end{vmatrix} \quad (21)$$

Dans ces conditions, l'équation à une seule variable

$$1 + Y(j\omega) = 0 \quad (22)$$

est évidemment remplacée par une équation à deux variables

$$1 + Y(j\omega, \Delta e) = 0, \quad (23)$$

à partir de laquelle on calculera l'amplitude et la fréquence des oscillations si l'on peut trouver des solutions convenables. En particulier, l'annulation du résultant R dont nous avons parlé plus haut fournit directement l'amplitude.

Dans le cas de l'oscillateur Colpitts, la condition d'accrochage obtenue en cherchant une racine imaginaire pure dans (9), soit

$$\mu = \frac{c_2}{c_1} \left(1 + \frac{r}{\rho} \right) + \frac{r\rho}{L} (c_1 + c_2) + r^2 \frac{c_2}{L} \quad (24)$$

est remplacée par le système

$$\frac{4\mu}{\pi} \left(\frac{\theta_1 + \sin \theta_1 \cos \theta_1}{2} \right) = \frac{c_2}{c_1} \left(1 + \frac{r}{\rho} \right) + \frac{r\rho}{L} (c_1 + c_2) + r^2 \frac{c_2}{L}, \quad (25)$$

$$\sin \theta_1 = \frac{h}{\Delta e} \quad (26)$$

qui nous fournit l'amplitude Δe des oscillations de pulsation ω_0

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{1}{L} \left(\frac{1 + \frac{r}{\rho}}{c_1} + \frac{1}{c_2} \right)}. \quad (27)$$

3. Validité des hypothèses faites sur les organes pseudolinéaires. — Au sujet du fonctionnement des organes limiteurs, nous parlerons maintenant des résultats d'expériences effectuées sur le traceur automatique d'équipotentielle du laboratoire de Physique du Collège de France. Cet appareil permet d'obtenir le réseau d'équipotentielles d'un système d'électrodes plan ou de révolution à l'aide d'une cuve rhéographique dont la sonde est astreinte à décrire l'équipotentielle choisie par l'opérateur.

Le rapport de transmission de ce servomécanisme est de la forme

$$Y(p) = \left(\frac{A_1}{Gp^3 + Ip^2 + f|p|} \right) \left(\frac{\omega_1 + 2p}{\omega_2 + 2p} \right). \quad (28)$$

La seconde parenthèse représente le rapport de transmission du réseau stabilisateur de l'appareil et la première celui de l'ensemble des autres organes parmi lesquels se trouve un groupe limiteur-filtre dont la courbe de gain est tout à fait analogue à celle de la figure 3 et définit, par conséquent, une zone linéaire et une zone de saturation.

En collaboration avec M. Moch, nous avons tracé le diagramme de Nyquist de l'appareil en réalisant

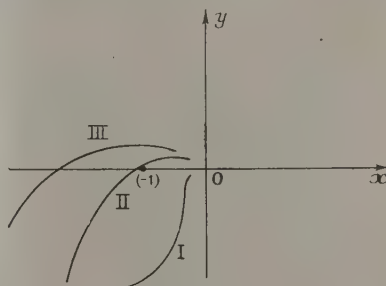


Fig. 5.

une coupure dans une liaison mécanique, ce qui nous a permis d'obtenir un enregistrement graphique des oscillations aux fréquences intéressantes (1 à 10 c/s) (fig. 5).

Dans une première expérience, nous avons tracé le diagramme de l'ensemble de l'appareil dans son état normal de fonctionnement.

Le limiteur n'est pas saturé, nous obtenons la courbe I.

Dans une seconde expérience, nous supprimons le réseau stabilisateur, ce qui a pour effet de saturer le limiteur. Nous obtenons la courbe II entourant le point (-1) .

Si le passage de I à II s'était fait sans quitter la zone linéaire nous aurions obtenu la courbe III déduite de I par les relations

$$\rho_I = \rho_{III} \rho_s, \quad \varphi_{III} = \varphi_I - \varphi_s, \quad (29)$$

ρ_I et φ_I étant les coordonnées polaires d'un point de I, ρ_{III} et φ_{III} celles du point correspondant de III et ρ_s et φ_s étant le module et la phase du rapport de transmission du réseau stabilisateur.

Or, nous constatons que II et III sont homothétiques et que les oscillations restent sinusoïdales. Ces résultats justifient l'hypothèse que nous avons faite d'organes pseudolinéaires dont l'effet est simplement de limiter le gain de la chaîne amplificatrice en fonction du signal d'entrée.

Ces expériences sont décrites en détail dans la thèse de M. Moch [3].

Manuscrit reçu le 11 septembre 1951.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] PAPIN D. et KAUFMANN A. — Cours de calcul matriciel appliqué, Albin Michel, 1950.
 [2] DUTHIL J. R. — Théorie des servomécanismes non linéaires. *La Radio Française*, Mai 1950.
 [3] MOCH R. — Contribution à l'étude de la stabilité des servomécanismes linéaires. Étude et réalisation d'un

traceur automatique d'équipotentielles. *Thèse de doctorat*, Paris, 1951.

DUNCAN W. J. et COLLAR A. R. — A method for the solutions of oscillation problems by matrices. *Phil. Mag.*, 1934, **17**, 865.

PARODI M. — Applications physiques de la transformation de Laplace (Édition du C. N. R. S.).

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM.
PHYSIQUE APPLIQUÉE.

SUPPLÉMENT AU N° 2.
TOME 13, FÉVRIER 1952, PAGE 28 A.

QUELQUES PROPRIÉTÉS ET UTILISATIONS DE LA TRIODE INVERSÉE.

Par A. ROGOZINSKI et J. WEILL.
Commissariat à l'Énergie atomique.

Sommaire. — Dans une triode inversée, la grille est portée à une tension *positive* et la plaque, qui sert d'électrode de commande, est polarisée *négativement*. Dans ces conditions, la lampe fonctionne en triode désamplificatrice et permet de mesurer, avec une consommation très réduite, des tensions continues négatives pouvant atteindre, suivant le modèle de lampe utilisée, quelques dizaines de kilovolts.

La consommation n'excède pas 10^{-9} A pour les tensions les plus élevées, mais décroît rapidement et peut descendre au-dessous de 10^{-12} A pour des tensions de quelques dizaines de volts. La réponse de la lampe est sensiblement linéaire sur une portion importante de sa caractéristique.

Les propriétés de la triode inversée, indiquées par Terman ⁽¹⁾ dès 1928, laissaient prévoir des applications électrométriques intéressantes, qui n'ont guère été développées jusqu'à ces dernières années où quelques auteurs ont repris le problème en question ⁽²⁾.

Des études sur ce sujet, commencées au début de 1947, nous ont permis d'appliquer ces propriétés à la réalisation de plusieurs types d'appareils : voltmètre mégohmmètre électrostatique, voltmètre haute tension et amplificateur de courants très faibles.

Principe de fonctionnement d'une triode inversée. — Dans un montage en triode inversée, parfois appelé montage en désamplificatrice, l'électrode de commande de la lampe est la plaque, l'électrode de mesure, ou de sortie, étant la grille (fig. 1). La tension d'attaque à laquelle est portée la plaque est négative; elle crée donc, vis-à-vis des électrons émis par la cathode, un champ de répulsion qui s'oppose au champ d'attraction dû au potentiel positif auquel on porte la grille de la lampe. Dans ces conditions, le courant total débité par la cathode est

⁽¹⁾ E. F. TERMAN, *I. R. E.*, 1928, **16**, 447.

⁽²⁾ R. J. SCHNEEBERGER, *Rev. Sc. Instr.*, U. S. A., 1948, **19**, 40; L. C. L. YUAN, *Rev. Sc. Instr.* U. S. A., 1948, **19**, 450.

$$I_t = I_p + I_g = k \left(V_g - \frac{V_p}{\gamma} \right)^{\frac{3}{2}},$$

où I_g et I_p sont respectivement les courants de plaque et de grille de la lampe, V_g et V_p , les tensions de grille et de plaque, k une constante et ν le coefficient de « désamplification » de la triode, sensiblement égal au coefficient d'amplification μ qui caractérise la triode dans un montage ordinaire en amplificatrice. Du fait du potentiel négatif de la plaque, le courant plaque est toujours très faible, car elle ne collecte pratiquement pas d'électrons. La limite inférieure de ce courant est imposée par les courants de fuite résultant de la résistance d'isolement finie de la plaque et par les courants inverses dus, en particulier, à la présence d'ions positifs à l'intérieur de la lampe. Chaque fois que l'on désirera obtenir un débit plaque très réduit, c'est-à-dire réaliser des conditions électrométriques, il conviendra de choisir des lampes très bien vidées et dont la plaque est très bien isolée. Comme nous le verrons par la suite, on peut obtenir des courants plaque aussi faibles que 10^{-14} A.

Le courant plaque pouvant toujours être négligé

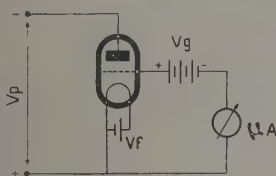


Fig. 1. — Schéma simple d'un montage de triode inversée.

devant le courant de grille qui, répétons-le, joue ici le rôle d'anode, on a

$$I_g = k \left(V_g - \frac{V_p}{\nu} \right)^{\frac{2}{\nu}}$$

Il sera donc possible de mesurer théoriquement des tensions V_p pouvant atteindre une valeur voisine de νV_g , pour laquelle le courant de la grille devient nul. En choisissant des valeurs convenables pour V_g , on pourra mesurer des tensions élevées dont la limite supérieure sera toutefois imposée par les possibilités de la lampe, en particulier par sa tenue au claquage. En utilisant divers types de lampes, depuis les lampes usuelles de réception jusqu'aux lampes d'émission de grandes dimensions, nous avons pu mesurer sans débit des tensions allant jusqu'à 25 000 V. La construction de tubes spécialement étudiés permettrait de dépasser largement cette valeur et présenterait un intérêt certain pour la mesure électrostatique (et rapide), toujours délicate, des tensions dépassant 100 000 V.

Montages. — Les montages usuels de la triode amplificatrice sont applicables à la triode inversée, les signes des tensions de plaque et de grille étant interchangeables. Nous avons utilisé divers types de

montage, tels que le montage simple (fig. 1) et le montage en « pont » (fig. 2).

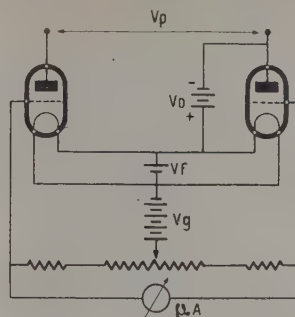


Fig. 2. — Montage en pont de deux triodes inversées.

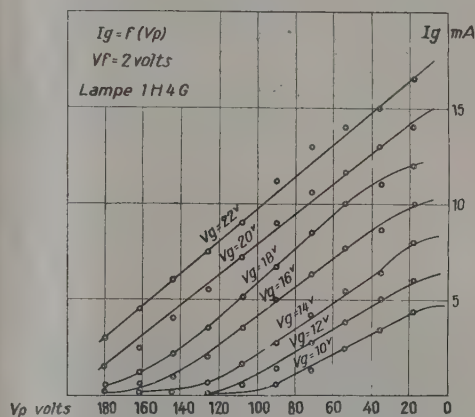


Fig. 3. — Caractéristiques $I_g(V_p)$ pour différentes valeurs de V_g d'une lampe 1H4G dans le cas du montage simple. Les valeurs indiquées pour V_p sont négatives.

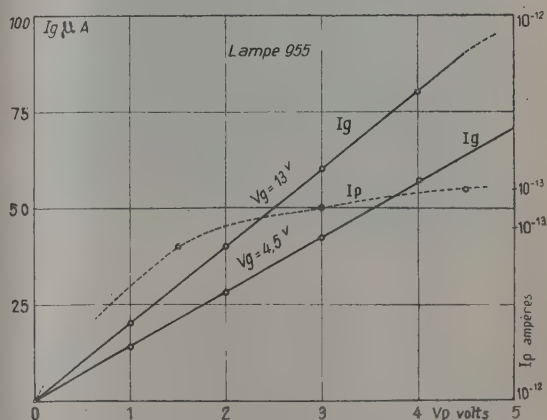


Fig. 4. — Caractéristiques $I_g(V_p)$ d'un montage en pont de deux lampes 955 et caractéristique $I_p(V_p)$ du même montage. Les valeurs indiquées pour V_p sont négatives.

Les caractéristiques $I_g(V_p)$ (fig. 3), obtenues avec

le montage de la figure 1, présentent une courbure initiale du côté des polarisations très négatives, un effet de saturation pour des polarisations élevées et une partie linéaire intermédiaire plus ou moins longue suivant les tubes et la tension de leur grille. La figure 4 montre les caractéristiques $I_g(V_p)$ et $I_p(V_p)$ obtenues avec le montage en pont de la figure 2. Une polarisation initiale V_0 permet de ne faire travailler les tubes que depuis le début de la portion linéaire de leur caractéristique $I_p(V_g)$. La même figure 4 indique la variation du courant plaque en fonction du potentiel appliqué à la grille. On constatera que ce courant peut devenir extrêmement faible et se maintenir au-dessous de 10^{-12} A, pour tous les potentiels correspondant à la partie linéaire de la caractéristique $I_p(V_p)$.

Réalisations. — Le montage de la figure 2 se prête parfaitement, avec des lampes ordinaires, aux mesures de tensions continues couvrant une échelle de 5 à 200 V, suivant le type de lampes employées et la polarisation appliquée sur les grilles des lampes. Par l'emploi d'un pont de résistances élevées, on pourra facilement étendre ce domaine de mesures jusqu'à des valeurs de 5 000 V environ.

Il est possible d'utiliser ce voltmètre à haute impédance pour la mesure des courants faibles, en faisant passer ceux-ci dans une résistance élevée

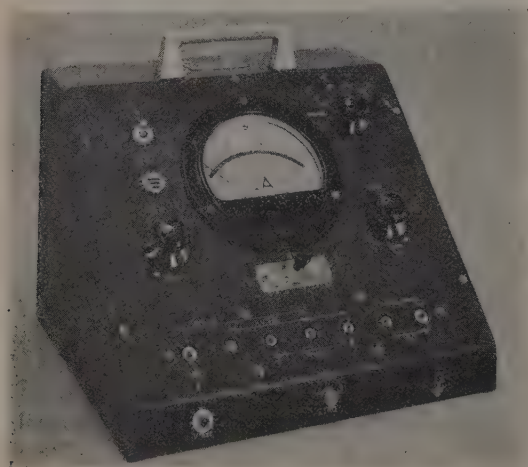


Fig. 5. — Voltmètre mégohmètre.

connue et en mesurant la chute de tension à ses bornes à l'aide de l'appareil. Il sera possible, de la même manière, de mesurer des résistances élevées par comparaison avec des résistances étalons. L'appareil

représenté sur la figure 5 et dont le schéma est donné par la figure 6, permet cet usage multiple.

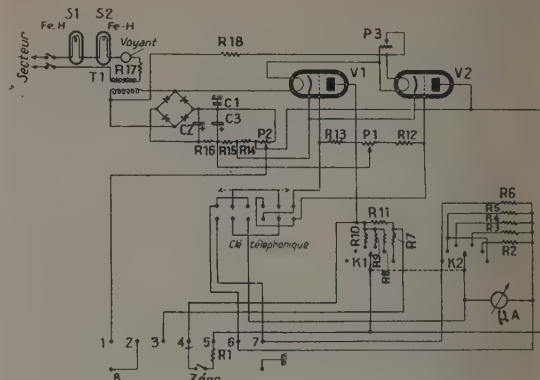


Fig. 6. — Schéma de câblage du voltmètre mégohmètre.

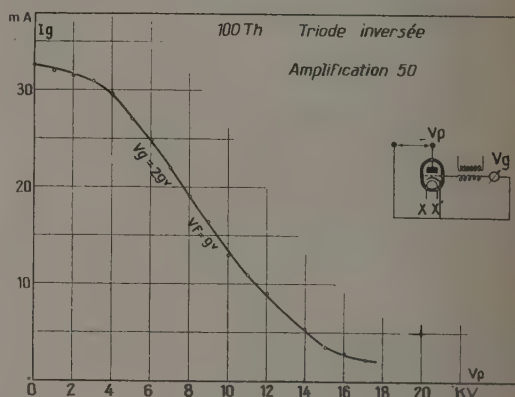


Fig. 7. — Réponse d'une triode 100 Th en montage inversé pour des tensions négatives comprises entre 0 et 20 000 V.

La figure 7 représente la courbe de réponse d'un appareil que nous avons également réalisé et qui donne la mesure de tensions pouvant atteindre 20 kV. La grille de la lampe est alimentée en alternatif, la lampe fonctionnant dans ces conditions en auto-redresseuse.

La triode inversée présente les avantages bien connus des lampes électromètres pour la réalisation de voltmètres à haute impédance. Néanmoins, il est important de souligner le fait que son emploi est particulièrement intéressant pour la mesure directe de tensions élevées pour lesquelles les lampes électromètres courantes ne peuvent convenir.

APPLICATION DE LA SPECTROMÉTRIE DES RAYONS X AU DOSAGE DE FAIBLES TENEURS DE MÉTAUX DANS LES MINÉRAIS

Par JACQUES DESPUJOLS,

Ingénieur E. C. P., attaché de recherches au C. N. R. S.
Laboratoire de Chimie physique de la Faculté des Sciences de Paris.

Sommaire. — Trois méthodes utilisant les spectres de rayons X ont été envisagées pour résoudre un problème industriel : le dosage rapide de métaux dans les stériles de minerais. Dans ces trois méthodes, il a été fait usage de spectrographes à cristal courbé.

La spectrométrie d'émission avec excitation par fluorescence donne les meilleurs résultats. Un appareil a été étudié et monté pour chercher les meilleures conditions expérimentales. Celles-ci ont été déterminées pour le zinc : il a été possible de doser cet élément dans des stériles avec une précision de 5 à 10 pour 100 sur des quantités de l'ordre de 0,1 pour 100. La même méthode a été appliquée au plomb.

Dans le cas du tungstène, il a fallu recourir à la spectrographie d'émission avec excitation cathodique.

La troisième méthode, dite « par absorption différentielle », basée sur la comparaison de deux intensités, mesurées ici par un compteur de Geiger, a été employée dans le cas du zinc. Les résultats concordent avec ceux donnés par la première méthode pour des teneurs supérieures à 2 pour 100.

Introduction. — Les exploitations modernes de mines métalliques, pour faciliter le transport ultérieur du minerai — et l'obtention du métal —, le traitent, après extraction, par des procédés divers : broyage fin, puis séparation par densité, flottation, grillage, etc. Il sort de l'installation située sur la mine même, un minerai « enrichi » et des « stériles » qui ne doivent contenir que les plus petites quantités possibles des métaux recherchés.

Pour la bonne marche de ces exploitations, il est essentiel de contrôler fréquemment la composition de ces stériles : si, par suite d'un mauvais fonctionnement des appareils ou d'un changement dans la nature ou les teneurs du minerai, les pourcentages en métaux des stériles augmentent anormalement, ce qui peut être la cause d'une perte sérieuse, il faut pouvoir y porter remède immédiatement. Il est donc important d'avoir une méthode permettant de doser avec sûreté et *très rapidement* des teneurs de l'ordre de 0,1 pour 100 à quelques pour-cent de métaux dans ces stériles.

Il m'a semblé que les méthodes utilisant les spectres de rayons X pouvaient être appliquées à ce cas.

Je me suis servi de spectrographes à cristal courbé, qui ont d'ailleurs été utilisés avec succès dans les nombreux problèmes de spectrochimie étudiés au Laboratoire de Chimie physique [1].

Tous les éléments ne peuvent pas être dosés avec la même facilité : les longueurs d'onde de leurs raies caractéristiques et de leurs discontinuités d'absorption, la forme de l'échantillon, la nature de la gangue, etc., conduisent à étudier spécialement chaque cas d'espèce.

Pour le zinc, j'ai pu employer la méthode qui

m'apparaissait *a priori* comme la meilleure : la spectrométrie d'émission, l'échantillon étant excité par fluorescence.

I. — Spectrométrie d'émission avec excitation par fluorescence.

A. Principe de la méthode et étude théorique des conditions optima. — L'échantillon à analyser est soumis à un rayonnement X dit « primaire ». Ainsi excité, il émet des rayons X de « fluorescence », qui ne comprennent que les raies caractéristiques des éléments présents dans l'échantillon. Ces raies sont séparées par un spectromètre, et l'on mesure leurs intensités, qui sont fonctions des teneurs correspondantes. Il est nécessaire que le rayonnement primaire comprenne des radiations correspondant à des énergies un peu plus grandes que les énergies d'excitation des raies considérées.

J'ai adopté pour la mesure de l'intensité relative des raies le compteur de Geiger, plus sensible que la plaque photographique, et qui avait déjà été utilisé par M^{lle} Cauchois [1] [3] et par les chercheurs américains [2].

Le nombre N d'impulsions fournies en un temps donné par le compteur se compose :

a. du nombre S (signal), fonction de l'intensité de la raie étudiée, donc fonction de la teneur en l'élément à doser, qui est ici le zinc ; soit x pour 100 cette teneur ;

b. du nombre n , représentant ce que j'appellerai dans la suite : « rayonnement parasite ». n comprend : les rayons cosmiques et contaminations radio-

actives donnant lieu au « mouvement propre » du compteur;

la diffusion du rayonnement primaire par les pièces de l'appareil, l'air et le cristal;

la fluorescence de ces mêmes substances;

enfin la diffusion du rayonnement primaire par l'échantillon lui-même.

n n'est pas rigoureusement indépendant de x ; mais pour des échantillons ne différant que par leur teneur en zinc, que je supposerai faible, n varie très peu; en effet la différence entre les rayonnements parasites se réduit à la différence de la diffusion (cohérente et incohérente) causée par une faible quantité de zinc et la quantité correspondante de gangue; cette différence est négligeable devant l'erreur statistique commise sur n .

S est le nombre intéressant à connaître; pour un échantillon ne contenant pas de zinc, $N_0 = n$; ceci permet de déterminer n par des mesures préliminaires. La mesure avec l'échantillon à doser donne N , et l'on en déduit

$$S = N - n.$$

Le problème est de connaître S avec la précision la meilleure : $\frac{\Delta S}{S}$ doit être le plus petit possible.

On ne peut pas diminuer les erreurs provenant de l'échantillon lui-même et des variations des conditions d'excitation, par une bonne construction de l'appareil. Je ne vais donc considérer ici que les erreurs statistiques :

$$\Delta N = \alpha \sqrt{N} \quad \text{et} \quad \Delta n = \alpha \sqrt{n};$$

ΔN et Δn sont les erreurs probables sur N et n si $\alpha = 0,67$

$$\Delta S = \sqrt{(\Delta N)^2 + (\Delta n)^2} = \alpha \sqrt{N + n}$$

et

$$\frac{\Delta S}{S} = \alpha \frac{\sqrt{N + n}}{N - n}.$$

Posons

$$y = \frac{\sqrt{N + n}}{N - n}. \quad (1)$$

Pour un échantillon donné, en faisant varier les paramètres p_i déterminant les conditions expérimentales, on fait varier N et n ; il est intéressant d'adopter les valeurs des p_i qui rendent y minimum. En particulier, un calcul très simple montre que si le paramètre étudié est l'intensité du courant i traversant le tube à rayons X, il y a intérêt à prendre la plus grande valeur de i possible.

ÉTUDE DE L'INTENSITÉ DE LA RAIE DE FLUORESCENCE. — a. Si l'on considère un pinceau de rayons X primaires, filiforme, monochromatique, d'intensité I_0 , pénétrant dans l'échantillon sous l'angle α avec la normale à la surface, un point M de son trajet sera le point de départ d'un faisceau de rayons de fluo-

rescence, dont on ne peut recueillir qu'une partie : recueillons par exemple un rayon MR faisant un angle β avec la normale (fig. 1); α et β ne sont pas forcément dans le même plan.

Le rayon incident, affaibli par absorption, a une intensité en M égale à

$$I'_0 = I_0 \exp \left(- \frac{\tau_0 z}{\cos \alpha} \right).$$

En traversant en M la couche de profondeur z et d'épaisseur dz , il s'affaiblit par effet photoélectrique de

$$dI'_0 = - \frac{I'_0 \mu_0 dz}{\cos \alpha};$$

τ_0 et μ_0 sont les coefficients d'affaiblissement total et photoélectrique pour le rayonnement incident.

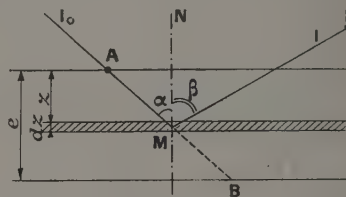


Fig. 1.

Le rayonnement de fluorescence émis par M dans la direction β et dans l'angle solide $d\omega$ a l'intensité

$$dI_1 = - dI'_0 = C \frac{d\omega}{4\pi}.$$

C est un coefficient de rendement; posons $C \frac{d\omega}{4\pi} = K$.

A la sortie de l'échantillon, l'intensité du rayon de fluorescence est

$$dI = I_0 \mu_0 K \exp \left(- \frac{\tau_0 z}{\cos \alpha} - \frac{\tau z}{\cos \beta} \right) \frac{dz}{\cos \alpha},$$

τ étant le coefficient d'affaiblissement total pour la longueur d'onde de fluorescence.

Ceci se produit pour tous les points M situés entre A et B; e étant l'épaisseur de l'échantillon, l'intensité du rayonnement de fluorescence sortant, dans la direction MR sera donc

$$I = \frac{I_0 \mu_0 K}{\tau_0 + \tau \frac{\cos \alpha}{\cos \beta}} \left[1 - \exp - e \left(\frac{\tau_0}{\cos \alpha} + \frac{\tau}{\cos \beta} \right) \right]. \quad (2)$$

L'exponentielle est négligeable si l'échantillon est suffisamment épais.

b. Considérons maintenant un faisceau parallèle de rayonnement primaire, et un faisceau correspondant de fluorescence, que nous supposons parallèle; supposons encore pour simplifier que le faisceau primaire soit illimité, ainsi que la surface de l'échantillon, le seul diaphragme étant la surface utile du cristal délimitant le faisceau de fluorescence.

Soient :

A la section droite utile du faisceau incident,
B la section droite du faisceau de fluorescence,
C la surface utile de l'échantillon

$$C = \frac{B}{\cos \beta} \quad \text{et} \quad A = C \cos \alpha = B \frac{\cos \alpha}{\cos \beta}.$$

Si le faisceau primaire est monochromatique et homogène, son intensité utile sera $J_0 = AI_0$, et l'intensité du faisceau de fluorescence :

$$J = AI = AI_0 \mu_0 K \frac{1}{\tau_0 + \tau \frac{\cos \alpha}{\cos \beta}};$$

A n'est défini que par α , β et B

$$J = BI_0 \mu_0 K \frac{1}{\tau + \tau_0 \frac{\cos \beta}{\cos \alpha}}. \quad (3)$$

Si l'on néglige les effets secondaires, K est proportionnel à $x \frac{\rho_e}{\rho_{Zn}}$, ρ_e et ρ_{Zn} étant les densités de l'échantillon et de l'élément à doser.

Nous avons donc

$$J = kx \frac{\left(\frac{\mu_0}{\rho}\right)_{Zn}}{\frac{\tau}{\rho} + \frac{\tau_0}{\rho} \frac{\cos \beta}{\cos \alpha}},$$

pour un rayonnement exciteur monochromatique; or le rayonnement réel est polychromatique; nous raisonnerons dans ce qui suit avec des coefficients μ_0 et τ_0 correspondant à une longueur d'onde moyenne de ce rayonnement.

Si $\left(\frac{\tau}{\rho}\right)_g$ est le coefficient massique d'absorption pour la gangue

$$100 \left(\frac{\tau}{\rho}\right)_e = \left(\frac{\tau}{\rho}\right)_g (100 - x) + \left(\frac{\tau}{\rho}\right)_{Zn} x.$$

Posons

$$m = \frac{1}{100} \left\{ \left(\frac{\tau_0}{\rho}\right)_{Zn} - \left(\frac{\tau}{\rho}\right)_g + \frac{\cos \beta}{\cos \alpha} \left[\left(\frac{\tau_0}{\rho}\right)_{Zn} - \left(\frac{\tau}{\rho}\right)_g \right] \right\}$$

et

$$p = \left(\frac{\tau}{\rho}\right)_g + \frac{\cos \beta}{\cos \alpha} \left(\frac{\tau_0}{\rho}\right)_g.$$

N — n constitue une mesure de l'intensité J, mesure proportionnelle à J si le compteur fonctionne normalement :

$$N - n = r \frac{x}{mx + p}. \quad (4)$$

Suivant que l'absorption de l'élément à doser est plus grande ou plus petite que celle de la gangue, m est positif ou négatif, et la courbe représentative de la fonction (4) a sa concavité dirigée vers le haut (cas le plus favorable pour les basses teneurs), ou vers le bas. Les courbes expérimentales données

par Friedman et Birks [2] pour le fer ont des formes qui correspondent à ces différents cas. Il est impossible de calculer m et p, car on ne connaît pas la longueur d'onde « moyenne » du rayonnement exciteur.

Le nombre N fourni par le compteur ne donnera une mesure fidèle de la teneur x que si la composition de la gangue, ou du moins son absorption globale, reste constante.

Si l'on savait réaliser des couches très minces et homogènes d'échantillon, on pourrait se débarrasser de cette sujétion; en effet, l'équation (2) se simplifie pour e petit :

$$J = \frac{I_0 K \mu_0 e}{\cos \alpha}.$$

I est fortement réduit, mais l'absorption de la gangue n'apparaît plus, du moins en première

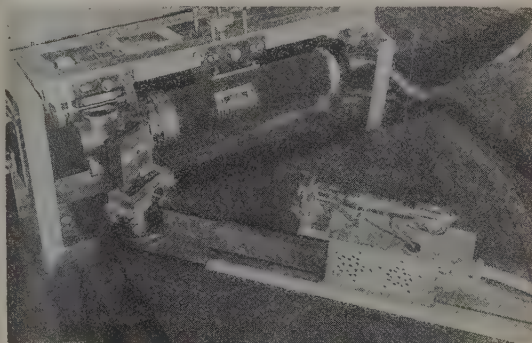


Fig. 2. — Appareil utilisé pour la fluorescence (protections enlevées).

approximation. L'application pratique de ce fait est particulièrement difficile dans le cas de substances en poudres; je ne l'ai pas tentée.

J'ai donc employé une quantité d'échantillon telle que l'exponentielle de l'équation (2) soit négligeable; dans le cas de minéral de zinc, le calcul conduit à une densité superficielle minimum d'environ 0,08 g/cm².

B. Dispositif expérimental. — J'ai fait l'étude d'un appareil destiné à déterminer les meilleures conditions de dosage; cet appareil a été construit à l'atelier du Laboratoire de Chimie physique (fig. 2). Il consiste en un spectromètre à compteur et à cristal courbé et en un ensemble porte-tube à rayons X, porte-échantillon; le tout est supporté par un châssis métallique. Il est possible de séparer les deux parties, qui ne sont assemblées que par deux boulons, si l'on veut employer le spectromètre pour un autre usage.

Le spectromètre est utilisable par transmission ou par réflexion; le rayon du cristal ne doit pas

dépasser 50 cm; à chaque rayon correspond un support de porte-cristal amovible.

A la place du compteur, on peut fixer un porte-plaque photographique.

Le porte-tube-porte-échantillon est conçu de telle sorte qu'il soit possible de faire varier dans de larges mesures les conditions géométriques de l'excitation. Le tube à rayons X utilisé est ici un tube Machlett AEG 50 T, à anticathode de tungstène et foyer large. Sa fenêtre (en béryllium) est dirigée vers le haut, de manière à ce que la face inférieure de l'échantillon soit la face utile, comme dans un microscope métallographique.

Les échantillons industriels se présentent sous forme pulvérulente; il est donc possible de les placer dans des boîtes cylindriques de 50 mm de diamètre, dont le fond est constitué par une feuille de cellophane mince transparente aux rayons X; l'agglomération préalable est ainsi évitée, et la durée totale du dosage raccourcie. Le poids total d'échantillon employé est de 10 à 15 g.

Le générateur haute tension est du type Greinacher à tension constante; il est complété par une installation de stabilisation :

a. Un stabilisateur électronique d'intensité a été fourni gracieusement à titre d'essai par la maison Chenaille, de Saint-Cloud; la variation de l'intensité passant dans le tube à rayons X est ainsi pratiquement nulle (inférieure à 1/10 000°).

b. Pour corriger les variations de tension du secteur, le poste est raccordé à l'alimentation générale 220 V par l'intermédiaire d'un « Réguvolt » de V. Alter qui abaisse les variations possibles de 15 à 1 pour 100.

Immédiatement au-dessous du compteur se trouve le préamplificateur, relié par un câble blindé au meuble renfermant l'amplificateur, les échelles électroniques, le générateur haute tension du compteur, les stabilisateurs, le numérateur et l'intégrateur. Je me suis servi tour à tour d'une installation Philips Norelco, révisée à l'atelier du laboratoire, et d'une installation entièrement construite au laboratoire.

C. **Étude des conditions optima pour le zinc.** — Le doublet $K\alpha$ du zinc, de longueurs d'onde 1432,22 uX pour $K\alpha_1$ et 1436,04 uX pour $K\alpha_2$, est particulièrement indiqué pour le dosage de cet élément. La longueur d'onde de la discontinuité K est de 1280,7 uX; le rayonnement exciteur issu d'une anticathode de tungstène sera composé :

des raies $L\gamma$ et d'une partie des raies $L\beta$
et du fond continu, de longueurs d'onde comprises entre 900 et 1280 uX.

J'ai opéré par transmission, pour pouvoir utiliser une grande surface d'échantillon.

Le principe de la méthode étant posé, on peut

faire choix d'un grand nombre de paramètres pour la disposition et le réglage de l'appareil; ce sont :

les conditions d'excitation : tension et intensité (le tube à rayons X étant choisi à l'avance);
le choix du cristal et du système de plans réflecteurs;
les conditions géométriques;
le type du compteur et l'ouverture de sa fente.

1° **EXCITATION.** — La variation de y [formule (1)] en fonction de la tension appliquée au tube, dans le cas où $x = 0,5$ pour 100, montre que, du moins jusqu'à 50 kV, la tension la plus élevée est la meilleure. J'ai adopté la valeur de 45 kV afin de ne pas fatiguer le tube qui ne supporte pas une tension supérieure à 50 kV.

J'ai dû limiter l'intensité du courant à 9 mA, par suite de la faible puissance du stabilisateur de tension.

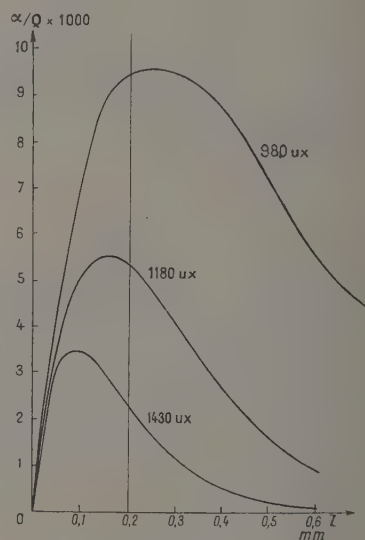


Fig. 3.

2° **CRISTAL.** — Les cristaux métalliques étaient particulièrement indiqués ici en raison de leur grande luminosité [3]; j'ai donc employé des monocristaux d'aluminium convenablement orientés qui avaient été obtenus — par recristallisation après écrouissage critique — au Laboratoire de Chimie physique de la Technische Hogeschoole de Delft (Pays-Bas) [4].

Les plans réticulaires (111) étaient perpendiculaires aux faces. Dans ces conditions, le pouvoir réflecteur d'un cristal est lié à son épaisseur d par les relations

$$\alpha = Q l e^{-\tau l} \quad \text{et} \quad l = \frac{d}{\cos \varphi},$$

l est le chemin parcouru par le rayonnement à l'intérieur du cristal, φ est l'angle de Bragg, et τ est le coefficient d'absorption du cristal pour la longueur d'onde utilisée; quand φ est petit, $l = d$.

L'épaisseur optimum est telle que $\frac{d\alpha}{dl} = 0$, ce qui correspond à $l = \frac{1}{\alpha}$.

La figure 3 donne les valeurs de α en fonction de l pour $\lambda = 980, 1180$ et 1430 uX.

Pour les longueurs d'onde supérieures à 1 \AA , l'épaisseur optimum est difficile à réaliser; on peut toutefois prendre une épaisseur un peu supérieure sans perdre trop de luminosité.

Le cristal finalement adopté avait $0,20 \text{ mm}$ d'épaisseur.

Le rayon de courbure R du cristal est lié à la distance D entre le cristal et le compteur par la relation

$$D = R \cos \varphi.$$

D'après Marmier [5], D optimum est donné par la formule

$$D = 4 \sqrt[3]{\frac{\delta F \sigma}{\alpha}},$$

ce qui conduirait à une valeur optimum pour le rayon de courbure avec :

δ , largeur de la fente du compteur;

F , ouverture du cristal;

σ , coefficient de diffusion du cristal;

α , facteur de réflexion du cristal.

J'ai fait le calcul dans le cas d'un cristal d'aluminium d'ouverture $F = 1,4 \times 2,7 \text{ cm}^2$, la largeur de la fente du compteur étant $\delta = 1 \text{ mm}$; σ et α ont été évalués de façon approchée : pour α j'ai supposé le cristal « idéalement imparfait » [6]. D'après ce calcul, le rayon optimum serait voisin de 2 cm , ce qui signifierait pratiquement que le rayon le plus petit possible est le meilleur. Comme je ne disposais que de cristaux de 25 et de 40 cm de rayon, je les ai comparés; j'ai obtenu de meilleurs résultats avec le rayon de 25 cm , que j'ai adopté par la suite.

3° CONDITIONS GÉOMÉTRIQUES. — Angles de l'échantillon avec les directions de rayonnements incident et émergent. — La discussion de l'équation (3), en tenant compte du fait que le faisceau incident, quoique plus large que la surface utile du cristal, n'a pas une largeur illimitée, conduit à placer l'échantillon de manière à ce que toute la surface du cristal, toute la fente du compteur et tout le faisceau incident soient complètement utilisés.

Cela a été confirmé par l'expérience : la figure 4 montre la disposition qui permet d'obtenir la valeur minimum pour y .

Distance de l'échantillon à la fenêtre du tube. — L'expérience a conduit à approcher le plus possible l'échantillon de la fenêtre du tube (fig. 4).

Distance de l'échantillon au cristal. — Le calcul

de Marmier indiquait une distance d entre l'échantillon et le cristal telle que

$$D = 3d.$$

J'ai cherché expérimentalement la valeur optimum de d dans deux cas :

pour un cristal de mica courbé sous 40 cm , j'ai trouvé

$$D = 2 d_{\text{opt}};$$

pour un cristal d'aluminium de 25 cm de rayon, pour des raisons d'encombrement, il était impossible d'approcher le porte-échantillon à moins de 106 mm du cristal, ce qui correspondait à $\frac{D}{d} = 2,3$; pour des valeurs de d supérieures à 106 mm , la fonction y

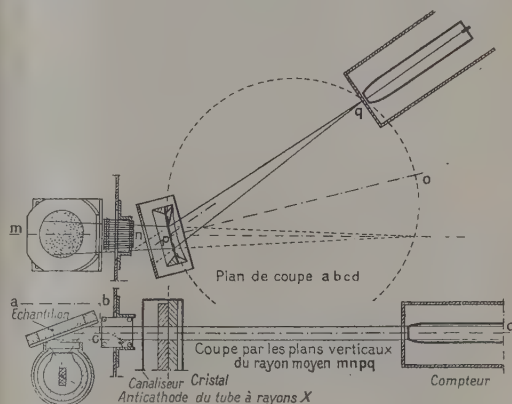


Fig. 4. — Dosages de zinc par fluorescence : utilisations des faisceaux de rayonnement X.

croissait avec d ; j'ai donc adopté pour les dosages $d = 106 \text{ mm}$.

4° UTILITÉ D'UNE FILTRATION DU RAYONNEMENT PRIMAIRE. — Le rayonnement parasite est composé pour la plus grande partie de rayonnement primaire diffusé par l'échantillon. M^{lle} Cauchois m'a suggéré de diminuer l'intensité de ce rayonnement par rapport au rayonnement excitateur, de longueurs d'onde plus courtes, en interposant entre la fenêtre du tube et l'échantillon un filtre, par exemple en aluminium ou bien un filtre sélectif pour éliminer la diffusion Compton.

Le calcul m'a conduit au résultat suivant :

En supposant que n est dû uniquement à du rayonnement diffusé de même longueur d'onde que celle de la raie observée, un filtre non sélectif n'est utile que pour des teneurs telles que $\frac{N}{n}$ soit inférieur à un certain nombre, ici égal à $2,7$.

Les teneurs de zinc que j'ai eu à doser étaient telles que je n'ai pas eu besoin de filtre.

Le calcul serait beaucoup plus difficile en tenant compte du mouvement propre, de la diffusion

Compton, et surtout du rayonnement diffusé réfléchi en second ordre par le cristal. Ce dernier rayonnement est certainement très intense : le rapport des pouvoirs réflecteurs des plans (111) de l'aluminium en second et premier ordre est de 20 pour 100, et le rayonnement de second ordre est beaucoup moins absorbé par l'air et surtout par le cristal.

D. Dosages de zinc dans les stériles.

1° COURBES D'ÉTALONNAGE. — J'ai commencé par étudier des échantillons « synthétiques » composés de sable de Fontainebleau et de sulfate de zinc, préparés par les laboratoires de la Société « Minerais et Métaux »; puis, pour me rapprocher des minerais réels, j'ai formé des échantillons « semi-synthétiques » avec de la gangue de Touissit (Maroc) ne contenant pas de zinc et de l'oxyde de zinc.

Les courbes obtenues en portant les résultats sur

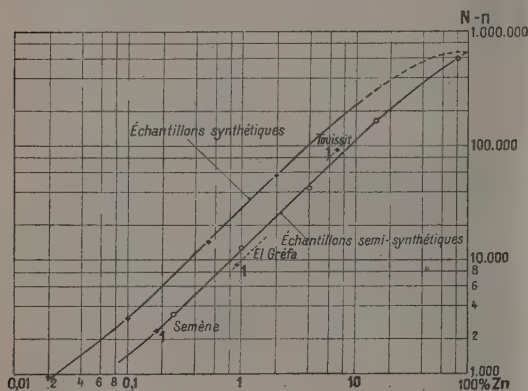


Fig. 5.

un graphique bilogarithmique (fig. 5) sont presque des droites pour des teneurs en zinc inférieures à quelques pour-cent, et sont parallèles sur une grande partie de leur longueur.

2° ESTIMATION DE LA PLUS PETITE QUANTITÉ DE ZINC DÉCELABLE. — D'après W. J. Oosterkamp [7] une raie est décelée avec certitude si son intensité dépasse le rayonnement parasite de cinq fois son erreur probable statistique.

Dans le cas de mélanges de sable et de sulfate de zinc, le rayonnement parasite donne 2 260 impulsions (en 5 mn et pour une intensité dans le tube de 9 mA). La raie qui aurait comme intensité

$$5 \times 0,67 \times \sqrt{2\,260} = 159$$

correspondrait à 0,002 pour 100 de zinc; pour une intensité de 50 mA (intensité maximum permise par le tube) et 30 mn de comptage, la teneur limite deviendra $2,6 \cdot 10^{-6}$.

Pour des échantillons naturels, le rayonnement parasite donne 1910 impulsions; le même calcul conduit

à une teneur limite décelable de 0,007 pour 100 pour 9 mA et 5 mn de comptage et de $1 \cdot 10^{-5}$ pour 50 mA et 30 mn, ceci bien entendu avec une tension et une intensité qui seraient parfaitement bien stabilisées.

3° ÉCHANTILLONS D'ORIGINE INCONNUE. — On ne connaît pas l'absorption de la gangue; il faut effectuer une mesure de comparaison : on peut par exemple mélanger intimement m grammes d'oxyde de zinc en poudre fine à M grammes d'échantillon; la teneur totale en zinc passe de x à x' :

$$\delta x = x' - x = 80,3 \frac{m}{M + m},$$

si x et m sont petits; pour x plus grand, x sera déterminé par approximations successives.

Pour de petites teneurs en zinc, on peut considérer la courbe $N = f(x)$ comme linéaire; soient N et N' les nombres correspondant à x et x' :

$$x = \delta x \frac{N - n}{N' - N}.$$

n qui varie très peu avec l'absorption de la gangue, peut être considéré comme connu avec assez de précision; pour les dosages d'échantillons naturels, j'ai pris $n = 1910$.

J'ai étudié entre autres des stériles de minerais originaires de l'Afrique du Nord. Pour quelques-uns d'entre eux, j'ai fait faire une analyse de contrôle par polarographie.

Dans le tableau I :

x_u représente la teneur en zinc donnée par les usines des Sociétés qui ont fourni les échantillons; x_p le résultat de l'analyse de contrôle par polarographie; x_1 la teneur déterminée par fluorescence X, avec deux mesures de 5 mn.

TABLEAU I.

Mine.	Nos.	x_u .	x_p .	x_1 .
El Gréfa.....	1	0,93	—	0,87
»	2	1,40	—	1,395
Semène.....	1	0,39	0,18	0,20
»	3	0,30	—	0,165
Touissit.....	1	$\left\{ \begin{array}{l} 6,70 \\ 8,19 \end{array} \right\}$	7,02	5,50

Les valeurs déterminées par polarographie pouvant être considérées comme les plus exactes, il est probable que les x_u relatifs aux échantillons du Djebel Semène sont entachés d'une erreur systématique.

Le calcul d'erreur conduit à une précision relative sur x_1 comprise entre 5 et 10 pour 100; l'erreur réelle semble être inférieure à cette valeur pour les faibles teneurs en zinc, et supérieure pour les fortes teneurs (par exemple pour l'échantillon de Touissit).

4° ÉCHANTILLONS D'ORIGINE CONNUE. — Le dosage peut alors être effectué avec une seule mesure; mais il faut préalablement étalonner l'appareil avec des échantillons de même origine et de teneurs connues. Les résultats x_2 du tableau II sont obtenus, toujours par deux mesures de 5 mn, en prenant comme échantillon-étalon le n° 1 de chaque mine, avec la teneur x_u pour El Gréfa et x_p pour Semène et Touissit.

TABLEAU II.

Mine.	Nos.	$N-n$	x_u	x_1	x_2
El Gréfa...	2	13 910	1,40	1,395	1,42
» ...	3	10 160	0,98	—	1,02
Semène...	2	2 194	0,37	—	0,16
» ...	3	2 102	0,30	0,165	0,155
Touissit...	2	100 000	7,30	—	7,8

Ces quelques exemples montrent que les résultats obtenus par fluorescence X sont cohérents.

Quand cela est possible, il est bien préférable de procéder en se référant à des échantillons-étalons, surtout pour les fortes teneurs.

J'ai étudié brièvement l'influence des éléments constitutifs de la gangue, à l'aide d'échantillons synthétiques composés de calcaire, silice, barytine, pyrite et blende. La figure 6 montre par exemple l'influence de la pyrite sur une gangue composée uniquement de calcaire; chaque point de ce graphique a été obtenu par une seule mesure de 5 mn.

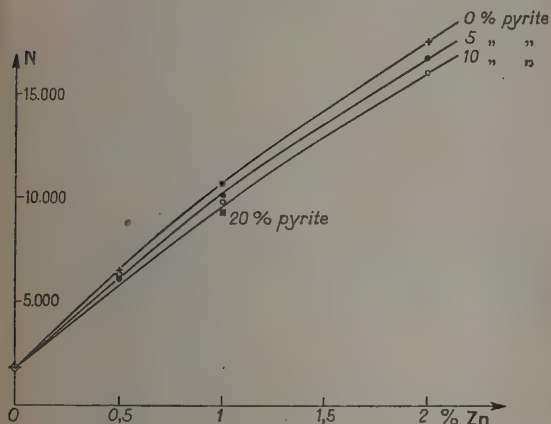


Fig. 6.

E. Dosages de plomb dans les stériles. — Les raies K du plomb, les plus intenses, sont de longueurs d'onde beaucoup trop courtes pour être utilisées dans l'installation dont je disposais. La raie $L\beta_1$ ($\lambda = 980,24$ uX) est très voisine des raies $L\beta_2$ ($\lambda = 980,99$ uX) et $L\beta_{15}$ ($\lambda = 981,91$ uX). Il m'est apparu expérimentalement qu'il était préférable de faire les comptages sur ce groupe $L\beta$ plutôt que sur la raie $L\alpha_1$ ($\lambda = 1172,7$ uX).

J'ai opéré avec exactement le même montage que

pour le zinc, de manière à pouvoir passer rapidement d'un dosage à l'autre, quoique ici il eût été probablement plus avantageux d'utiliser un tube à rayons X à anticathode de molybdène.

J'ai essayé de réduire le rayonnement parasite

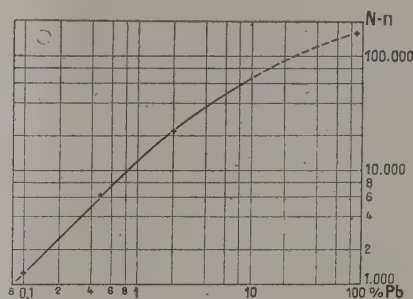


Fig. 7.

par rapport à la raie, en filtrant le rayonnement primaire par quelques dixièmes de millimètre d'aluminium; cela n'a pas apporté d'amélioration, probablement par suite de la présence de rayonnement réfléchi en second ordre par le cristal; j'ai donc fait toutes les mesures sans ce filtre.

J'ai tracé une courbe d'étalonnage avec des échantillons synthétiques composés de sable de Fontainebleau et de galène pulvérisée. Cette courbe (fig. 7) a sa concavité plus accentuée que celle relative au zinc; elle cesse d'être une droite à 45°, un peu avant 1 pour 100 de plomb.

1° ÉCHANTILLONS D'ORIGINE INCONNUE. — L'interpolation linéaire est ici très douteuse pour les teneurs u en plomb supérieures à 1 pour 100; on peut tourner la difficulté en portant sur la courbe d'étalonnage les nombres N et N' qui correspondent aux teneurs u et $u' = u + \delta u$; on en déduit

$$\frac{u'}{u} = r \quad \text{et} \quad u = \frac{\delta u}{r-1}.$$

Le tableau III est relatif aux mêmes échantillons que plus haut.

u_u est la teneur donnée par les usines des Sociétés qui ont fourni les échantillons;

u_p est le résultat d'une analyse de contrôle par polarographie;

u_e est le résultat d'une analyse de contrôle par électrolyse;

u_1 est la teneur déterminée par fluorescence X et interpolation linéaire;

u_2 est la teneur déterminée par fluorescence X et

$$\text{par la formule } u_2 = \frac{\delta u}{r-1}.$$

TABLEAU III.

Mine.	Nos.	u_u	u_p	u_e	u_1	u_2
Semène....	2	1,08	—	1,03	1,10	1,02
El Gréfa....	2	1,37	4,45	4,02	5,7	4,95
Touissit....	1	0,96	0,945	0,96	0,70	0,62

A titre de vérification de la méthode, j'ai d'autre part composé un échantillon semi-synthétique avec du stérile de Touissit et du sulfure de plomb. Par fluorescence, j'ai trouvé $u_1 = 1,42$ et $u_2 = 1,17$; la teneur réelle était de 1,12 pour 100 de plomb.

2° ÉCHANTILLONS D'ORIGINE CONNUE. — La méthode de la courbe d'étalonnage peut s'appliquer. Pour cette même série d'échantillons nord-africains, j'ai pris comme échantillons étalons : pour la mine du Djebel Semène, le n° 2, pour El Gréfa, le n° 1, et pour Touissit, le n° 1, avec les teneurs u_e , qui sont les plus précises.

Soit u_s la teneur déterminée par cette méthode.

TABLEAU IV.

Mine.	N°.	$N - n$.	u_e .	u_s .	u_e .
Semène.....	1	12 515	1,85	—	1,75
".....	2	7 613	1,08	1,03	—
".....	3	6 630	1,08	1,00	0,90
El Gréfa.....	1	6 796	0,28	1,12	—
".....	2	20 340	1,37	4,02	4,0
".....	3	14 630	0,92	—	2,5
Touissit.....	1	4 797	0,96	0,96	—
".....	2	2 828	0,60	—	0,57

Ici encore, il est probable qu'une erreur systématique s'est glissée dans les teneurs u_e des échantillons d'El Gréfa.

La teneur limite au-dessus de laquelle la méthode utilisant une mesure de comparaison risque de donner des résultats erronés est ici inférieure à 1 pour 100 de plomb. Par contre, si l'on emploie des échantillons-étalons, on arrive à des résultats corrects; ces résultats sont moins précis que dans le cas du zinc, car à teneur égale le nombre N est plus petit pour le plomb que pour le zinc, dans les conditions d'expérience; cela est dû, mise à part l'absence de raies du tungstène dans la région utile du rayonnement primaire, au fait que les raies L sont naturellement moins intenses que les raies K et ont un rendement de fluorescence moindre.

II. — Spectrographie d'émission avec excitation cathodique.

Je n'ai pu employer la méthode qui vient d'être décrite pour doser le tungstène dans des stériles, car je ne disposais pas de tube à rayons X qui produise un rayonnement intense dans une gamme de longueurs d'onde comprise entre 1000 et 1200 uX, et qui n'émette pas les raies du tungstène. J'ai donc dû procéder par la méthode classique [8] d'émission par excitation cathodique.

Dans cette méthode, l'échantillon est placé en faible quantité (de l'ordre de 2 cg ou moins) sur l'anticathode d'un tube à rayons X démontable. Le rayonnement issu du tube est analysé par un

spectrographe; l'intensité de la raie choisie est mesurée par photométrie. L'usage d'une chambre d'ionisation ou d'un compteur de Geiger ne serait pas intéressant ici, car le fonctionnement du tube n'est pas assez stable pour permettre des mesures correctes en peu de temps.

Le problème était de doser rapidement des quantités de tungstène comprises entre 0,02 et 0,15 pour 100 dans des stériles composés principalement de quartz accompagné de pyrite, mispickel et tourmaline.

J'ai été guidé pour le choix de l'appareillage par le travail de M^{me} Prévot [1] sur le rhénium, élément voisin du tungstène.

Le tube à rayons X démontable était du type Seeman. La fenêtre de sortie du rayonnement était constituée par une feuille d'aluminium de 15 μ d'épaisseur. Comme je ne pouvais pas me servir d'un filament de tungstène, qui aurait distillé dans le tube, j'ai employé une « cathode à oxydes » dont le filament, en alliage nickel-chrome, était recouvert d'une pellicule d'oxydes alcalino-terreux.

La raie du tungstène observée était la raie $L\alpha_1$, de longueur d'onde 1473,37 uX.

J'ai employé comme cristal une lame de mica courbée sous 40 cm; ceci m'a imposé la méthode par transmission; en effet, la distance réticulaire des plans de clivage du mica est trop grande pour permettre un réglage commode du spectrographe en travaillant par réflexion.

Les plans réticulaires (100), donnant une dispersion d'environ 12,5 uX/mm, m'ont fourni une assez bonne luminosité.

Résultats. — Étant donné les précautions prises pour assurer la reproductibilité des dosages, la quantité minimum de tungstène décelable n'est ici pas inférieure à 0,03 pour 100.

Un simple examen visuel et la comparaison avec des clichés témoins permet de doser des quantités de tungstène inférieures à 0,15 pour 100 avec une erreur absolue moindre que 0,03 pour 100.

III. — Dosages de zinc dans les minerais par spectrométrie d'absorption.

A. Principe de la méthode utilisée. — J'ai employé la méthode par « absorption différentielle ». Cette méthode, indiquée par Glocker et Frohnmayer [9], a été utilisée par Moxnes [10] justement dans le cas du zinc. L'intensité du rayonnement était mesurée par une méthode photographique. Voges [11] a remplacé par la suite la plaque photographique par une chambre d'ionisation. Enfin M^{lle} Cauchois et K. Mac Taggart [12] ont utilisé avec succès un spectromètre à cristal courbé par transmission et un compteur de Geiger pour observer les modifications d'intensité soit de deux raies

encadrant une discontinuité, soit de deux bandes étroites de fond continu; ils ont indiqué la méthode de la « double fente » pour ces études.

Je rappelle ici le principe de la méthode : on mesure l'intensité de deux rayonnements X monochromatiques de longueurs d'onde λ_1 et λ_2 encadrant une discontinuité d'absorption de l'élément à doser.

Soient $\frac{\tau_1}{\rho}$ et $\frac{\tau_2}{\rho}$ les coefficients massiques d'absorption correspondant à λ_1 et λ_2 (fig. 8), K le rapport des intensités des rayonnements quand l'échantillon est interposé sur leur passage, et K_0 ce rapport en l'absence d'échantillon. S'il n'y a pas dans le produit à analyser d'autre élément dont une discontinuité d'absorption soit comprise entre λ_1 et λ_2 et si ces longueurs d'onde sont assez proches l'une de l'autre,

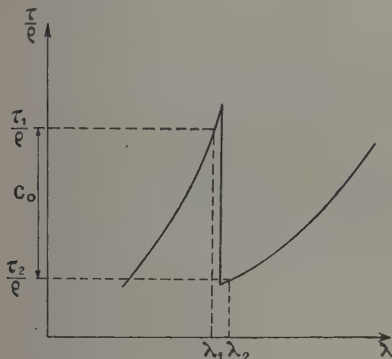


Fig. 8.

la densité superficielle m de l'élément cherché est donnée par la relation

$$m = \frac{1}{C_0} \log_e \frac{K}{K_0}, \quad \text{avec} \quad C_0 = \frac{\tau_1}{\rho} - \frac{\tau_2}{\rho}.$$

Pratiquement, si l'on donne à la constante C_0 sa valeur théorique, on n'obtient pas de bons résultats; il faut déterminer une constante C par des expériences préliminaires. Si M est la masse par centimètre carré de l'échantillon et si x pour 100 est la teneur en l'élément cherché

$$x = 100 \frac{m}{M} \quad \text{et} \quad x = \frac{100}{M} \frac{2,3}{C} (\log_{10} K - \log_{10} K_0).$$

B. CONDITIONS EXPÉRIMENTALES. — 1° DENSITÉ SUPERFICIELLE OPTIMUM DE L'ÉCHANTILLON. — L'erreur absolue sur m est

$$\Delta m = \frac{1}{C} \frac{\Delta K}{K},$$

car K_0 peut être connu avec toute la précision voulue. Si N_1 et N_2 sont les nombres d'impulsions fournies par le compteur

$$K = \frac{N_2}{N_1}.$$

L'erreur probable statistique sur K est

$$\frac{\Delta K}{K} = \alpha \left(\frac{1}{N_2} + \frac{1}{N_1} \right), \quad \text{avec} \quad \alpha = 0,67.$$

On en tire

$$\Delta m = \frac{\alpha}{C \sqrt{N_2}} (1 + \sqrt{K}).$$

Si m est très petit, K est peu différent de K_0 ; la précision absolue est à peu près constante pour un même temps de comptage, N_2 dépend surtout de l'absorption de la gangue.

Il y a intérêt à avoir $\frac{\Delta m}{m}$ minimum.

Soit a le coefficient massique d'absorption de l'échantillon pour λ_2 , et soit N_{02} le nombre d'impulsions pour λ_2 en l'absence de l'échantillon :

$$N_2 = N_{02} e^{-aM}.$$

Posons

$$\frac{Cx}{2100} = b \quad \text{et} \quad k = \frac{100\alpha}{xC\sqrt{N_{02}}},$$

$$\frac{\Delta m}{m} = k \frac{e^{\frac{aM}{2}}}{M} (1 + K_0 e^{bM}).$$

Quand x est donné, k et b sont constants. La valeur M_{opt} rendant minimum la fonction $\frac{\Delta m}{m}$ est, quand x est petit, c'est-à-dire b négligeable

$$M_{\text{opt}} = \frac{2}{a};$$

quand b n'est pas négligeable, on peut calculer approximativement M_{opt} qui a une valeur comprise entre $\frac{2}{a}$ et $\frac{2}{a+2b}$.

Pour le zinc dont la discontinuité d'absorption K a pour longueur d'onde 1280,7 uX, si la gangue est composée uniquement de calcaire :

$$a = 44 \quad \text{et} \quad M_{\text{opt}} = 0,045 \text{ g/cm}^2;$$

si la gangue est siliceuse :

$$a = 20 \quad \text{et} \quad M_{\text{opt}} = 0,1 \text{ g/cm}^2.$$

Pratiquement, pour de très grandes intensités de rayonnement X, il peut y avoir avantage à augmenter un peu l'épaisseur des échantillons : pour des valeurs de N supérieures à quelques centaines par seconde, le compteur ne fonctionne plus convenablement.

Pour éviter de mettre en solution le minerai, j'ai cherché à obtenir des agglomérés homogènes de masse superficielle comprise entre 0,05 et 0,1 g/cm². J'ai essayé des liants divers : colles, cires, paraffine, dissolution de caoutchouc, plâtre, collodion, résines naturelles ou synthétiques. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec des poudres à mouler : par mélange de l'échantillon avec 20 pour 100 en poids de méthyl-acrylate en poudre fine polymérisé par rayonnement, et par cuisson de l'ensemble

sous pression à 170°C pendant 10 mn, j'ai obtenu de petits disques, de 20 mm de diamètre, assez solides pour pouvoir être manipulés.

B. Appareillage. — J'ai employé le spectromètre et le porte-tube à rayons X décrits dans la première partie de ce travail, en faisant pivoter le tube de manière à ce que sa fenêtre soit dirigée vers le cristal.

Le compteur était muni de deux fentes; un cache en plomb permettait d'obturer alternativement l'une ou l'autre. Ces fentes, de 0,25 mm de large, étaient séparées de 1,4 mm, ce qui correspondait à un écart en longueur d'onde de 25 uX.

Le calcul m'avait montré que, pourvu que les fentes soient situées complètement de part et d'autre de la discontinuité, leur ouverture n'apportait pas de perturbation appréciable; mais que leur distance était

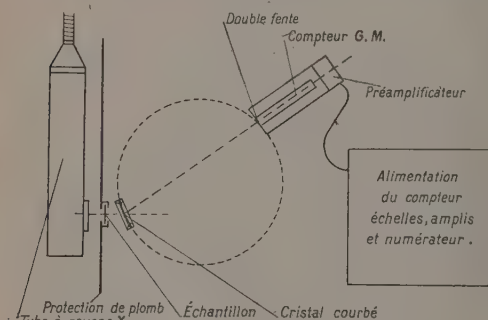


Fig. 9.

la cause d'une erreur due à la différence des coefficients d'absorption de la gangue pour λ_1 et λ_2 .

Le cristal, d'aluminium, était courbé sous 25 cm de rayon; j'ai utilisé les plans réticulaires (111).

Pour éviter le rayonnement réfléchi en ordre supérieur, j'ai dû limiter la tension appliquée au tube à 16 kV; les variations relatives de tension étant importantes, j'ai effectué des mesures alternées de 2 mn sur λ_1 et λ_2 et j'ai fait la moyenne des résultats obtenus.

C. RÉSULTATS DES DOSAGES. — 1° ÉTALONNAGE.

— J'ai obtenu le point O avec du stérile de Touissit ne contenant pas de zinc; pour avoir d'autres points, j'ai ajouté à cet échantillon des feuilles de zinc d'épaisseur 15 et 25 μ , ce qui correspondait à 10,65, 17,75 et 10,65 + 17,75 = 28,4 mg : cm².

Ces expériences préliminaires m'ont donné

$$C = 161.$$

2° Le tableau V est relatif aux résultats trouvés pour des stériles d'Italie et de Sardaigne, ainsi que pour des échantillons d'Afrique du Nord déjà dosés par fluorescence.

x_3 est la valeur trouvée par absorption, sans correction de l'erreur due à l'écartement des fentes;

x_4 est la valeur trouvée par absorption avec correction de cette erreur.

TABLEAU V.

Echantillons.	u_a	u_p	x_1	x_2	x_3
37 526.....	1,20	—	0,69	0,22	0,96
37 539.....	0,70	—	0,32	0	0,37
37 554.....	2,32	—	—	0,97	1,75
37 182.....	4,90	—	—	4,12	4,49
El Gréfa, n° 1...	0,93	—	0,87	0,02	0,54
Touissit, n° 1....	{ 6,70 8,19 }		7,02	5,50	5,47 5,62

Pour les échantillons d'Italie et de Sardaigne, il n'a pas été fait d'analyse de contrôle par une méthode sûre.

L'erreur absolue sur x_4 est inférieure à 0,5 pour 100 pour les basses teneurs. La méthode n'est en tout état de cause acceptable que pour des teneurs supérieures à 2 pour 100; mais, même pour les fortes teneurs, la précision est toujours mauvaise. La durée totale du dosage est de l'ordre de 30 mn.

Conclusion. — L'analyse quantitative par émission avec excitation cathodique est essentiellement une méthode de laboratoire, nécessitant un appareillage compliqué et des opérateurs entraînés; relativement longue, délicate et peu sûre, elle ne doit être employée que lorsque les autres méthodes se trouvent en défaut : par exemple pour le dosage de très faibles teneurs, ou quand on ne dispose que de très petites quantités d'échantillons (quelques milligrammes), ou dans des cas particuliers, comme celui du tungstène.

La méthode avec excitation par fluorescence, par contre, paraît dès à présent applicable industriellement; elle donne des résultats en quelques minutes, avec une précision relative de 5 à 10 pour 100; l'appareillage, assez simple, peut être installé sur la mine même, et pourrait dans un proche avenir être rendu presque entièrement automatique, pour doser simultanément plusieurs éléments.

Pour les grandes teneurs, l'absorption pourrait rendre des services; dans le cas de minerais pauvres — et non plus de stériles — difficiles à mettre en solution, donc à doser par d'autres méthodes (par exemple pour des minerais silicatés), et de provenances les plus diverses.

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Chimie physique de la Faculté des Sciences de Paris, sous la direction de M^{lle} Cauchois, qui m'en avait proposé le sujet, et qui m'a si souvent aidé de ses bons conseils. Je suis heureux de pouvoir lui exprimer ici, ainsi qu'à M. Bauer, Directeur du laboratoire, mes sentiments les plus sincères de reconnaissance.

Qu'il me soit permis de remercier aussi les Sociétés minières, qui se sont intéressées à cette étude et m'ont très aimablement fourni des échantillons, ainsi que

M. Kahn, Secrétaire général de l'Union technique des Minerais et Métaux bruts.

J'exprime toute ma reconnaissance à M. le Professeur W. G. Burgers, ainsi qu'à M. T. J. Tiedema, qui m'ont accueilli avec tant de bienveillance au

Laboratoire de Chimie physique de la Technische Hogeschool de Delft; ma gratitude va également à la Commission chargée de l'application de l'accord culturel franco-néerlandais qui m'a permis d'effectuer ce stage à Delft.

Manuscrit reçu le 19 novembre 1951.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] HULUBEI H. et CAUCHOIS Y. — *Disq. Mat. et Phys.*, 1940, 1, fasc. 1, 141. — CAUCHOIS Y. — *J. Chim. Phys.*, 1942, 39, 161. — CAUCHOIS Y. — Sur la sensibilité de détection d'un élément, pur ou en mélange, d'après ses spectres de rayons X. Exemples. Maranus, Porto, 1945. — CAUCHOIS Y. — La spectroscopie des rayons X appliquée à l'analyse chimique en Métallurgie. *Congrès pour le centenaire de l'A. I. Lg.*, Liège, 1947, Section Métallurgie physique, p. 115. — PRÉVOT-LE-BLAN A. — *Diplôme d'études supérieures*, Paris, 1947; *J. Chim. Phys.*, 1948, 45, 251. — CAUCHOIS Y. — *Transactions, Instruments and Measurements Conference*, Stockholm, 1949, p. 46. — LEMASSON A. — *Diplôme d'études supérieures*, Paris, 1949.
- [2] FRIEDMANN H. et BIRKS L. S. — *Rev. Sc. Instr.*, 1948, 19, 323. — CORDOVI. — *Steel*, 1948, 123, 88. — ABBOTT J. L. — *Iron age*, 1948, 162, 58 et 212. — BIRKS L. S. et BROOKS E. J. — *Anal. Chem.*, 1950, 22, n° 8, 1017. — BIRKS L. S., BROOKS E. J., FRIEDMAN H. et MORE R. M. — *Anal. Chem.*, 1950, 22, 1258. — BIRKS L. S. et BROOKS E. J. — *Anal. Chem.*, 1951, 23, 707.
- [3] CAUCHOIS Y., TIEDEMA T. J. et BURGERS W. G. — *Acta Cryst.*, 1950, 3, 372.
- [4] TIEDEMA T. J. — *Acta Cryst.*, 1949, 2, 261.
- [5] MARMIER, BLASER, PREISWERK et SCHERRER. — *Helvet. Acta*, 1949, 22, 155.
- [6] GUINIER A. — *Radiocristallographie*. — JAMES W. — The optical principles of the diffraction of X Rays.
- [7] OOSTERKAMP W. J. — *Transactions, Instruments and Measurements Conference*, Stockholm, 1949.
- [8] VON HEVESY G. — *Chemical Analysis by X Rays and its Applications*, Mac Graw Hill, 1932.
- [9] GLOCKER et FROHMAYER. — *Ann. Physik*, 1925, 67, 369.
- [10] MOKNES. — *Z. Phys. Chem.*, 1931, A 152, 380.
- [11] VOGES. — *Z. Physik*, 1933, 80, 542.
- [12] CAUCHOIS Y. et MAC TAGGART K. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, 228, 1003.
- [13] *Chem. Eng. News*, 1948, 26, 993. — LIEBHAFSKY. — *Anal. Chem.*, 1949, 21, 17 et 1950, 22, 15.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM.
PHYSIQUE APPLIQUÉE.

SUPPLÉMENT AU N° 2.
TOME 13, FÉVRIER 1952, PAGE 41 A.

LES TRAJECTOIRES DANS LES LENTILLES ÉLECTRONIQUES : UNE MÉTHODE D'APPROXIMATION

Par F. BERTEIN.

Sommaire. — On sait que l'équation différentielle des trajectoires de l'Optique électronique ne s'intègre commodément que dans un très petit nombre de cas particuliers; même pour des champs très simples, le problème de détermination de ces trajectoires exige l'emploi de méthodes d'approximation (fractionnement en plusieurs sections, construction point par point, etc.), méthodes longues et se prêtant mal à une étude en fonction des paramètres susceptibles d'être mis en jeu. Nous envisagerons ici une méthode d'approximations successives offrant les caractères suivants : dans le cas des champs de forme simple elle fournit aisément les trajectoires avec une précision suffisante et, de plus, sous une forme analytique qui se prête à l'étude en fonction des divers paramètres; d'autre part, l'obtention des approximations supérieures ne présente pas d'autre complexité que celle offerte par la résolution d'un système d'équations algébriques linéaires.

Position du problème. — Prenons à titre d'exemple une lentille à trois électrodes de microscopie électronique; elle crée un champ dans la région de ces électrodes; on notera $v(z)$ la fonction potentiel correspondante prise sur l'axe Oz de la lentille. Comme l'indique la figure 1, la variation de cette fonction est localisée sur un segment de Oz, segment qu'on définira par la suite par les abscisses -1 et $+1$ pour simplifier l'écriture. Les régions situées à gauche et à droite de cet intervalle sont respectivement les espaces objet et image de la lentille.

Une trajectoire est déterminée par son ordonnée $s(z)$ fonction de l'abscisse z . Nous nous limitons ici à l'approximation de Gauss et l'on sait que $s(z)$ est reliée à $v(z)$ par une équation différentielle linéaire. Le problème de la lentille exige que l'on connaisse la correspondance entre les parties rectilignes présentées par cette trajectoire dans les espaces objet et image et il suffit à cet effet de connaître les points cardinaux du système : points principaux et foyers.

Un cas très important (fig. 1) est celui où la fonction $v(z)$ est symétrique, c'est-à-dire paire en z . Nous

porterons alors notre attention sur deux trajectoires particulières dont il est aisé de prévoir l'existence par raison de symétrie :

1° Une trajectoire antisymétrique, c'est-à-dire de fonction $s^1(z)$ impaire; ses intersections avec Oz sont les points principaux B, B';

2° Une trajectoire symétrique, c'est-à-dire de fonction $s^2(z)$ paire; ses intersections avec Oz sont les points antiprincipaux A, A'.

Les foyers F et F' sont les milieux des segments BA, B'A', de sorte que la détermination des deux trajectoires s^1 et s^2 fixe immédiatement les éléments cardinaux.

Nous envisagerons également le cas de $v(z)$ antisymétrique (impaire); mais ainsi que nous le verrons, il ne s'agira que d'un artifice de calcul permettant de passer aux champs dénués de symétrie.

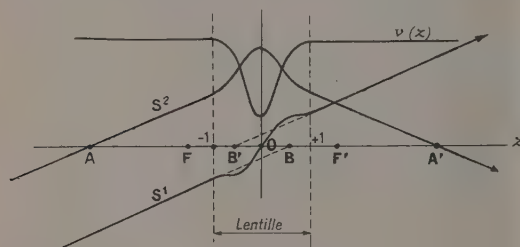


Fig. 1.

La méthode sera exposée pour des *champs électrostatiques de révolution*, mais on l'étendrait sans difficulté aux champs magnétiques et à tous les types de champs conduisant à un phénomène de focalisation : champ à deux dimensions, par exemple.

Nous supposons toujours le champ de la lentille limité à l'intervalle d'abscisses $z(-1, +1)$, mais sans d'ailleurs admettre pour cela que les espaces extérieurs (objet et image) soient nécessairement à potentiel constant (par exemple lentilles séparant des régions de champs uniformes).

Notations : coefficients et moments. — Les fonctions de z à considérer dans l'intervalle $(-1, +1)$ sont susceptibles d'être définies et d'intervenir dans les calculs de deux manières différentes que nous noterons de façon systématique.

Elles pourront, d'une part être fixées par les coefficients de leurs développements suivant les puissances de z , ces coefficients seront notés par les mêmes lettres, mais affectés d'indices inférieurs, soit

$$s = s_0 + s_1 z + \dots + s_k z^k + \dots = \sum_k s_k z^k. \quad (1)$$

En ce qui concerné la fonction v , nous rencontrerons

son développement au voisinage de $z=1$; les coefficients en seront notés w_k

$$v = \sum_k w_k (z-1)^k. \quad (2)$$

Les fonctions de z pourront, d'autre part, intervenir par leurs *moments* que l'on notera à l'aide des majuscules correspondantes affectées d'indices; soit $v(z)$, les moments correspondants sont, par définition,

$$\left. \begin{aligned} V_0 &= \int_{-1}^{+1} v \, dz, \\ V_1 &= \int_{-1}^{+1} z v \, dz, \\ V_k &= \int_{-1}^{+1} z^k v \, dz \quad (k \text{ entier}). \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

Les moments impairs de fonctions paires et les moments pairs de fonctions impaires sont identiquement nuls.

Les V_k sont connus par intégration graphique ou analytiquement, par exemple en fonction des w_k définis en (2)

$$V_k = 2 \left[\frac{w_0}{k+1} - \frac{w_1}{(k+1)(k+2)} + \frac{2w_2}{(k+1)(k+2)(k+3)} + \dots \right]. \quad (4)$$

Sauf pour les indices k les plus faibles, ces développements sont assez rapidement convergents pour être limités aux tous premiers termes.

Équations fondamentales de résolution. — L'équation déterminant les trajectoires $s(z)$ à partir de la loi de potentiel $v(z)$ sur l'axe est

$$4vs'' + 2v's' + v''s = 0, \quad (5)$$

l'accentuation représentant la dérivation par rapport à z . Nous chercherons à la résoudre de manière approchée en adoptant comme fonction s un *polynôme en z de degré n* , soit conformément aux notations (1)

$$s = s_0 + s_1 z + \dots + s_n z^n. \quad (6)$$

Si $(N+1)$ est le nombre de termes du polynôme, nous dirons qu'il définit une *approximation d'ordre N* . (L'ordre 1 correspond ainsi à deux termes, ce qui est bien le minimum exigible, un terme unique ne pouvant évidemment donner aucune information.)

Formons à l'aide de ce polynôme le premier membre de l'équation (5) des trajectoires; cette expression est alors une fonction de z non nulle, soit

$$4vs'' + 2v's' + v''s = p(z). \quad (7)$$

On choisira les coefficients s_k de telle manière que $p(z)$ soit très petit, c'est-à-dire de valeur très voisine de zéro. Il existe, bien entendu, de nombreuses façons

d'exprimer une telle condition; on adoptera ici la suivante, sans chercher s'il en existe de meilleures : nous prendrons les divers moments de la fonction $p(z)$, soit

$$P_i = \int_{-1}^{+1} z^i p \, dz \quad (8)$$

et nous exprimerons que le plus grand nombre possible de ces moments sont nuls en les prenant suivant l'ordre des indices.

Un calcul très simple va fournir la traduction analytique de cette condition. L'expression de P_i est, compte tenu de (6),

$$P_i = \int_{-1}^{+1} \sum_k [\{ k(k-1)v z^{i+k-2} + 2kv' z^{i+k-1} + v'' z^{i+k} \} s_k \, dz. \quad (9)$$

Elle met en évidence les moments V_k , V'_k , V''_k des fonctions v , v' , v'' ; des intégrations par parties permettent de les ramener tous aux moments d'une seule de ces fonctions; nous prendrons, par exemple, ceux V_k de v .

On vérifie, en effet, que

$$\left. \begin{aligned} V'_k &= 2\varphi_k - kV_{k-1}, \\ V''_k &= 2\varphi'_k - 2k\varphi_{k-1} + k(k-1)V_{k-2}. \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

où l'on pose

$$\left. \begin{aligned} 2\varphi_k &= \begin{cases} v(1) - v(-1) & \text{si } k \text{ est pair,} \\ v(1) + v(-1) & \text{si } k \text{ est impair,} \end{cases} \\ 2\varphi'_k &= \begin{cases} v'(1) - v'(-1) & \text{si } k \text{ est pair,} \\ v'(1) + v'(-1) & \text{si } k \text{ est impair,} \end{cases} \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

Effectuant ces calculs, les expressions des moments P_i sont alors des fonctions linéaires homogènes de s_k

$$P_i = \sum_k P_{ik} s_k, \quad (12)$$

où

$$P_{ik} = (3k^2 - 3k + i^2 - i) \varphi_{i-k-1} + 2(k-i) \varphi_{i+k-1} + 2\varphi'_{i+k}. \quad (13)$$

Conformément à notre convention, la condition de « petitesse » imposée à $p(z)$ qui doit fixer les $(N+1)$ coefficients s_k de s s'exprimera en annulant les N premiers moments non identiquement nuls *a priori* c'est-à-dire

$$\sum_k P_{ik} s_k = 0 \quad (\text{pour } N \text{ valeurs de } i). \quad (14)$$

C'est là un système ordinaire de N équations linéaires

$i \quad \varphi_k \dots$	1.	3.	5.
$\frac{1}{2} P_{ik} = 1 \dots \dots$	ω_1	$9V_2 + 2\omega_0 + \omega_1$	$30V_4 + 4\omega_0 + \omega_1$
3.	$3V_2 - 2\omega_0 + \omega_1$	$12V_4 + \omega_1$	$33V_6 + 2\omega_0 + \omega_1$

(19)

homogènes en s_k de coefficients donnés par (13); les coefficients s_k définissant la trajectoire approchée $s(z)$ seront ainsi déterminés si l'on connaît les moments V_i du potentiel sur l'axe $v(z)$. Ces derniers peuvent s'obtenir sans qu'on ait à se préoccuper d'expression analytique pour $v(z)$ à moins qu'une telle expression ne soit connue *a priori* [1]. On remarque que les valeurs de P_{ik} sont déterminées à partir des V_i et indépendamment de l'ordre N de l'approximation choisie. Les moments d'indices $(i+k-\infty)$ négatifs intervenant dans P_{ik} sont à évaluer à zéro. Par ailleurs, le tableau suivant donne les coefficients $(3k^2 - 3k + i^2 - i)$ pour les premiers indices

$i \quad k \dots$	0.	1.	2.	3.	4.	5.	6.	7.
0.	0	0	6	18	36	60	90	126
1.	0	0	6	18	36	60	90	126
2.	2	2	8	20	38	62	92	128
3.	6	6	12	24	42	66	96	132
4.	12	12	18	30	48	72	102	138
5.	20	20	26	38	56	80	110	146
6.	30	30	36	48	66	90	120	156

(15)

Si l'on fait intervenir au lieu des V_k , les moments V'_k de v' , les P_{ik} s'écrivent

$$P_{ik} = - \frac{3k^2 - 3k + i^2 - i}{(i+k-1)} V'_{i+k-1} + \frac{8k(k-1)}{i+k-1} \varphi_{i+k-1} + 2\varphi'_{i+k}. \quad (16)$$

Nous allons maintenant montrer la résolution du système (14) en procédant en trois étapes : champs symétriques, champs antisymétriques et champs dénués d'éléments de symétrie.

Champs symétriques (fonction v paire). — Conformément aux observations du début, nous en déterminerons successivement la solution impaire (antisymétrique) et la solution paire (symétrique). Nous nous bornerons à l'approximation du deuxième ordre; cette approximation est déterminée par un système (15) de deux équations obtenues en annulant deux moments de $p(z)$; elle met en jeu des formules de s à trois termes.

Trajectoire antisymétrique. — Elle est de la forme

$$s = s_1 z + s_3 z^3 + s_5 z^5, \quad (17)$$

c'est-à-dire d'indices $k = 1, 3, 5$.

Nous annulerons les deux premiers moments non nuls *a priori*, c'est-à-dire ceux d'indices $i = 1, 3$.

Les coefficients P_{ik} du système résolvant sont donnés par le tableau suivant, en notant que d'après (11) et (2), l'on a

$$\varphi_{i+k-1} = \omega_0, \quad \varphi'_{i+k} = \omega_1. \quad (18)$$

Les déterminants mineurs de deuxième rang de ce tableau sont

$$\left. \begin{aligned} \alpha_1 &= 297V_2V_0 - 360V_2^2 + 33(2\omega_0 + \omega_1)V_0 \\ &\quad - 6(8\omega_0 + 7\omega_1)V_2 + 9(2\omega_0 + \omega_1)V_2 + 4\omega_0^2, \\ \alpha_2 &= 90V_2V_4 - 33\omega_1V_0 - 30(2\omega_0 - \omega_1)V_4 \\ &\quad + 3(4\omega_0 + \omega_1)V_2 - 8\omega_0^2, \\ \alpha_3 &= -27V_2^2 + 12\omega_1V_4 + 12(\omega_0 - \omega_1)V_2 + 4\omega_0^2. \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

Ils constituent les coefficients respectifs d'une trajectoire impaire particulière, mais nous envisagerons celle dont la pente est +1 dans l'espace image; elle est alors définie par

$$\left. \begin{aligned} s_1 &= \frac{\alpha_1}{\alpha_1 + 3\alpha_3 + 5\alpha_5}, & s_3 &= \frac{\alpha_3}{\alpha_1 + 3\alpha_3 + 5\alpha_5}, \\ s_5 &= \frac{\alpha_5}{\alpha_1 + 3\alpha_3 + 5\alpha_5}. \end{aligned} \right\} \quad (21)$$

$i \quad k \dots \dots \dots$	$0.$	$2.$	$4.$
$\frac{1}{2}P_{ik} = 0. \dots \dots \dots$	ω_1	$3V_0 + 2\omega_0 + \omega_1$	$18V_2 + 4\omega_0 + \omega_1$
$2. \dots \dots \dots$	$V_0 - 2\omega_0 + \omega_1$	$4V_2 + \omega_1$	$19V_4 + 2\omega_0 + \omega_1$

(25)

Les mineurs de deuxième rang sont :

$$\left. \begin{aligned} \beta_0 &= 57V_0V_4 - 72V_2^2 + 19(2\omega_0 + \omega_1)V_4 \\ &\quad - 2(8\omega_0 + 11\omega_1)V_2 + 3(2\omega_0 + \omega_1)V_0 + 4\omega_0^2, \\ \beta_2 &= 18V_0V_2 - 19\omega_1V_4 + 18(-2\omega_0 + \omega_1)V_2 \\ &\quad + (4\omega_0 + \omega_1)V_0 - 8\omega_0^2, \\ \beta_4 &= -3V_0^2 + 4\omega_1V_2 + 4(2\omega_0 - \omega_1)V_0 + 4\omega_0^2, \end{aligned} \right\} \quad (26)$$

d'où la trajectoire paire dont la pente est +1 dans l'espace image :

$$\left. \begin{aligned} s_0 &= \frac{\beta_0}{2\beta_2 + 4\beta_4}, & s_2 &= \frac{\beta_2}{2\beta_2 + 4\beta_4}, \\ s_4 &= \frac{\beta_4}{2\beta_2 + 4\beta_4}. \end{aligned} \right\} \quad (27)$$

trajectoire fournissant les points antiprincipaux par

$$z(A) = \frac{s(1)}{s'(1)} - 1 = s_0 - s_2 - 3s_4. \quad (28)$$

Dans la plupart des champs à envisager, le champ est nul aux extrémités de l'intervalle $(-1, +1)$, c'est-à-dire $\omega_1 = 0$, ce qui facilite encore la résolution du système résolvant.

Champs antisymétriques (fonction v impaire).

La fonction v d'un tel champ change de signe pour $z = 0$; or, étant donné sa signification physique : tension d'accélération de l'électron au point considéré, les trajectoires doivent rester dans la région où $v(z)$ est positive et, par suite, ne peuvent traverser l'abscisse $z = 0$. Cela se traduit dans l'équation différentielle (5) par le fait que cette dernière présente alors une singularité en $z = 0$. Toutefois, cette singularité n'apparaîtra pas dans notre méthode d'approximation : nous obtiendrons encore des trajectoires « approchées » s'étendant sur

Cette trajectoire fournit les points principaux de la lentille, d'après (fig. 1),

$$z(B) = \frac{s(1)}{s'(1)} - 1, \quad (22)$$

c'est-à-dire

$$z(B) = -(2s_3 + 4s_5). \quad (23)$$

Trajectoire symétrique. — Elle fait intervenir les indices $k = 0, 2, 4$

$$s = s_0 + s_2z^2 + s_4z^4. \quad (24)$$

Les deux premiers moments à annuler ici sont d'indices $i = 0, 2$.

Le tableau suivant donne les P_{ik} :

toutes les abscisses; la raison de symétrie fait prévoir ici encore des solutions paires et impaires.

Il peut sembler étrange *a priori* que les trajectoires exactes, limitées par exemple au demi-plan z positif puissent admettre des approximations s'étendant ainsi à tout le demi-plan z négatif. On verra

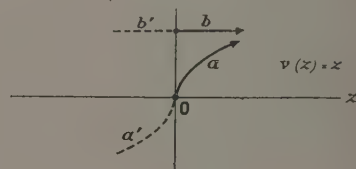


Fig. 2.

qu'il n'en est rien si l'on examine le cas antisymétrique le plus simple : $v = z$, ce qui correspond à un champ uniforme dans tout l'espace; les trajectoires sont alors des demi-paraboles et des demi-droites partant de l'abscisse $z = 0$, par exemple a et b dans la figure 2.

Mais l'examen de l'équation (5) correspondante montre qu'elle admet également les trajectoires symétriques des précédentes par rapport à $z = 0$, on peut donc considérer cette équation comme étant satisfaite par des « trajectoires » s'étendant de $-\infty$ à $+\infty$ obtenues en raccordant les solutions « droites » avec les « gauches »; il en existera de symétriques telles que bb' et d'antisymétriques telles que aa' .

Toutefois, les champs antisymétriques ne se rencontrent pas chez les lentilles proprement dites et les trajectoires approchées que nous allons déterminer ne présenteront pas d'intérêt par elles-mêmes;

elles interviendront à titre d'éléments intermédiaires dans l'étude des trajectoires des champs dénués de symétrie.

Trajectoire antisymétrique : $s = s_1 z + s_2 z^3 + s_3 z^5$. — On doit annuler ici les deux moments d'indices $i = 0, 2$; le tableau des coefficients est

i, k, \dots	1.	3.	5.	
$\frac{1}{2} P_{ik} = 0, \dots$	$\omega_0 + \omega_1$	$9V_1 + 3\omega_0 + \omega_1$	$30V_3 + 5\omega_0 + \omega_1$	(29)
2, ...	$V_1 - \omega_0 + \omega_1$	$10V_3 + \omega_0 + \omega_1$	$31V_5 + 3\omega_0 + \omega_1$	

d'où les mineurs

$$\left. \begin{aligned} \alpha_1 &= 279V_1V_5 - 300V_3^2 + 31(3\omega_0 + \omega_1)V_5 - 40(2\omega_0 + \omega_1)V_3 + 9(3\omega_0 + \omega_1)V_1 + 4\omega_0^2; \\ \alpha_3 &= 30V_1V_3 - 31(\omega_0 + \omega_1)V_5 + 30(-\omega_0 + \omega_1)V_3 + (5\omega_0 + \omega_1)V_1 - 8\omega_0^2; \\ \alpha_5 &= -9V_1^2 + 10(\omega_0 + \omega_1)V_3 + 2(3\omega_0 - 5\omega_1)V_1 + 4\omega_0^2. \end{aligned} \right\} \quad (30)$$

Trajectoire symétrique : $s = s_0 + s_2 z^2 + s_4 z^4$. — Le tableau des coefficients du système résolvant est

i, k, \dots	0.	2.	4.	
$\frac{1}{2} P_{ik} = 1, \dots$	$-\omega_0 + \omega_1$	$3V_1 + \omega_0 + \omega_1$	$18V_3 + 3\omega_0 + \omega_1$	(31)
3, ...	$3V_1 - 3\omega_0 + \omega_1$	$6V_3 - \omega_0 + \omega_1$	$21V_5 + \omega_0 + \omega_1$	

d'où les mineurs :

$$\left. \begin{aligned} \beta_0 &= 63V_1V_5 - 108V_3^2 + 21(\omega_0 + \omega_1)V_5 \\ &\quad - 24\omega_1V_3 + 3(\omega_0 + \omega_1)V_1 + 4\omega_0^2; \\ \beta_2 &= 54V_1V_3 + 21(\omega_0 - \omega_1)V_5 + 18(-3\omega_0 + \omega_1)V_3 \\ &\quad + 3(3\omega_0 + \omega_1)V_1 - 8\omega_0^2; \\ \beta_4 &= -9V_1^2 + 6(-\omega_0 + \omega_1)V_3 \\ &\quad + 6(\omega_0 - \omega_1)V_1 + 4\omega_0^2. \end{aligned} \right\} \quad (32)$$

Champs dénués de symétrie. — Le cas d'un champ dénué de symétrie peut naturellement se traiter de manière autonome suivant la même méthode; il est plus simple toutefois de les ramener aux deux cas particuliers précédents.

A cet effet nous mettrons en évidence les composantes antisymétrique et symétrique de $v(z)$, soit

$$v(z) = v^1(z) + v^2(z), \quad (33)$$

où

$$v^1 = \frac{v(z) - v(-z)}{2},$$

$$v^2 = \frac{v(z) + v(-z)}{2},$$

les indices supérieurs 1 et 2 indiquant dans ce paragraphe les caractères de parité des fonctions.

Prenons les trajectoires correspondant à ces composantes et que nous venons de calculer successivement, en prenant pour fixer les idées la même approximation du deuxième ordre; on les notera

$$\left. \begin{aligned} s^{11} &\text{ solution impaire} \\ s^{12} &\text{ solution paire} \end{aligned} \right\} \text{ du champ impair } v^1,$$

$$\left. \begin{aligned} s^{21} &\text{ solution impaire} \\ s^{22} &\text{ solution paire} \end{aligned} \right\} \text{ du champ pair } v^2,$$

[formules respectives : (21), (27), ...]

Nous chercherons à déterminer les trajectoires du champ total v sous la forme

$$s = \alpha_{11}s^{11} + \alpha_{12}s^{12} + \alpha_{21}s^{21} + \alpha_{22}s^{22} + s^0, \quad (34)$$

c'est-à-dire en notation condensée

$$s = \sum a_{mn} s^{mn} + s^0, \quad (35)$$

où $m, n = 1, 2$.

Les a_{mn} seront des coefficients et $s^0(z)$ une fonction choisie à l'avance.

A cet effet, nous écrivons, conformément à la méthode, la nullité des quatre premiers moments de $p(z)$

$$P_i = 0 \quad (i = 0, 1, 2, 3), \quad (36)$$

Or en vertu de la définition de $p(z)$, on peut écrire

$$p = \sum_{lmn} a_{lmn} p^{lmn} + p^{10} + p^{20}, \quad (37)$$

où

$$\left. \begin{aligned} p^{lmn} &= \text{fonction } p(z) \text{ formée avec } p^l \text{ et } s^{mn}, \\ p^{l0} &= \text{fonction } p(z) \text{ formée avec } v^l \text{ et } s^0. \end{aligned} \right\} \quad (38)$$

Le système résolvant (36) s'écrit ainsi

$$\sum_{lmn} a_{lmn} P_i^{lmn} = -(P_i^{10} + P_i^{20}) \quad (i = 0, 1, 2, 3). \quad (39)$$

Les P_i^{lmn} sont des moments de p^{lmn} et certains sont nuls *a priori* : les uns en vertu de la parité des fonctions correspondantes, par exemple, P_0^{112} ; les autres, du fait des propriétés (34). Il en résulte que le système (38) se réduit à

$$\left. \begin{aligned} P_0^{21} a_{21} + P_0^{22} a_{22} &= -P_0^{10} - P_0^{20}, \\ P_1^{21} a_{21} + P_1^{22} a_{22} &= -P_1^{10} - P_1^{20}, \\ P_2^{21} a_{21} + P_2^{22} a_{22} &= -P_2^{10} - P_2^{20}, \\ P_3^{21} a_{21} + P_3^{22} a_{22} &= -P_3^{10} - P_3^{20}. \end{aligned} \right\} \quad (40)$$

Il se décompose en deux systèmes indépendants qui permettront ainsi de déterminer les coefficients a_{mn} dès l'instant qu'on a choisi une fonction s^0 . On pourra prendre, par exemple, successivement

$$s^0 = 1, \quad s^0 = z$$

pour obtenir deux trajectoires du champ v , ce qui suffit comme on sait, à les déterminer toutes.

Application à la lentille hyperbolique. — Nous jugerons de l'approximation obtenue, dans un cas simple que l'on sait calculer et qui a été étudié par ailleurs en détail [2], celui de la lentille hyperbolique.

Il s'agit du champ symétrique défini par une loi sur l'axe du type

$$v = 1 + az^2. \quad (40)$$

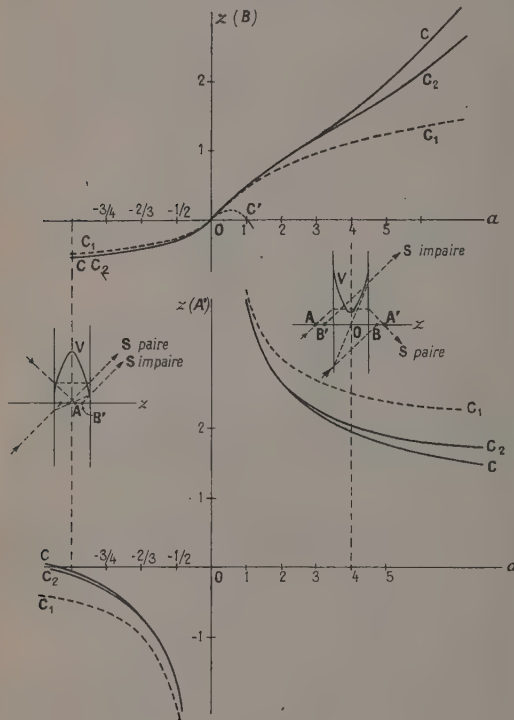


Fig. 3.

On en déduit les équations exactes des trajectoires sous la forme paramétrique

$$\begin{cases} z = A \operatorname{sh} \sqrt{2at} + B \operatorname{ch} \sqrt{2at}, \\ s = C \sin \sqrt{at} + D \cos \sqrt{at}, \end{cases} \quad (41)$$

t étant, par exemple, le temps.

Trajectoire impaire. — Elle s'écrit

$$\begin{cases} z = \frac{1}{\sqrt{a}} \operatorname{sh} \sqrt{2at}, \\ s = C \sin \sqrt{at}, \end{cases} \quad (42)$$

($A = \frac{1}{\sqrt{a}}$ en vertu de la relation entre le potentiel et la vitesse de l'électron, C est arbitraire).

Déterminons les points principaux à l'aide de (22);

ces points sont définis ici par des intersections de tangentes et non par les trajectoires elles-mêmes qui peuvent ne pas être rectilignes à l'extérieur de l'intervalle d'abscisses $(-1, +1)$. On calcule à cet effet

$$\frac{s}{s'} = \sqrt{\frac{2}{a}} \operatorname{tg} \sqrt{a} t \operatorname{ch} \sqrt{2at}.$$

La valeur du temps t en $z = 1$ étant fournie par

$$\operatorname{sh} \sqrt{2at} = \sqrt{a},$$

on obtient ainsi

$$z(B) = \sqrt{\frac{2(1+a)}{a}} \operatorname{tg} \left[\frac{1}{\sqrt{2}} \log(\sqrt{a} + \sqrt{1+a}) \right] - 1. \quad (43)$$

La figure 3 représente la variation de cette abscisse en fonction de a (courbe c); on y a reporté les valeurs négatives de a suivant une échelle homographique. La pente de la courbe à l'origine est 0,5.

Traisons maintenant le problème à l'aide de la méthode exposée; on a aisément les valeurs des moments de v

$$\left. \begin{aligned} I_0 &= 2 + \frac{2a}{3}, & V_2 &= \frac{2}{3} + \frac{2a}{5}, \\ I_1 &= \frac{2}{5} + \frac{2a}{7}, & & \dots \end{aligned} \right\} \quad (44)$$

Les P_{ik} à considérer ici sont ceux du tableau (19) qui s'écrivent, en fonction de a ,

i, k	1	8	5
$P_{1k} = 1 \dots$	$4a$	$16 + 15,2a$	$32 + 29,14a$
$3 \dots$	$2,4a$	$9,6 + 10,86a$	$22,86 + 22,66a$

(45)

Examinons alors successivement les approximations du premier et du deuxième ordres.

La première s'écrit :

$$s = s_1 z + s_3 z^3,$$

elle est fixée par l'équation unique

$$P_1 \equiv P_{11}s_1 + P_{13}s_3 = 0,$$

ce qui donne immédiatement s_1 et s_3 et la position du plan principal d'après (23); on trouve ainsi

$$z(B) = \frac{a}{2(1+0,2a)}, \quad (46)$$

loi reportée sur la figure 3 : la courbe c_1 correspondante a même pente que c à l'origine; toutefois, elle s'écarte nettement de c à partir de $a = 2$.

Passons à l'approximation du deuxième ordre; s a l'expression (17) et les valeurs des coefficients obtenues par l'annulation de P_1 et P_3 et exposées en (20) s'écrivent ici

$$\left. \begin{aligned} \alpha_1 &= 28a^2 + 81a + 58, \\ \alpha_3 &= -20,7a^2 - 14,4a, \\ \alpha_5 &= 6,95a^2; \end{aligned} \right\} \quad (47)$$

dans ces conditions,

$$z(B) = \frac{\alpha(1 + 0,47\alpha)}{2(1 + 0,65\alpha + 0,01\alpha^2)}. \quad (48)$$

La loi correspondante est figurée par la courbe c_2 et l'on voit, en comparant à c , que cette approximation fournira, avec une précision suffisante dans de nombreux cas, les points principaux jusqu'à des valeurs du paramètre α atteignant 5 et davantage.

Si l'on continue à faire croître α , l'approximation finit par s'écarter fortement de la trajectoire exacte : on sait que cette dernière présente un nombre croissant de sinuosités, ce dont le polynôme (17) ne peut évidemment rendre compte. Mais il s'agit là d'un fonctionnement limite de la lentille, au delà duquel cette lentille ne se laisse plus traverser (propriétés de miroir), fonctionnement sans intérêt pratique en raison de son instabilité.

Trajectoire paire. — La trajectoire paire exacte est :

$$z = \frac{1}{\sqrt{a}} \operatorname{sh} \sqrt{2a} t, \\ s = C \cos \sqrt{a} t.$$

On en déduit la position des points antiprincipaux

$$z(A') = \sqrt{\frac{2(1+\alpha)}{\alpha}} \cot g \left[\frac{1}{\sqrt{2}} \log(\sqrt{a} + \sqrt{1+\alpha}) \right] + 1.$$

En ce qui concerne notre approximation, les P_{ik} sont ici

$i \quad k \dots$	0.	2.	4.
$z_{ik} = 0 \dots$	4α	$16 + 12\alpha$	$32 + 26,4\alpha$
$z_{ik} = 2 \dots$	$1,333\alpha$	$5,333 + 7,2\alpha$	$19,2 + 18,86\alpha$

(49)

L'approximation du premier ordre donne

$$z(A') = \frac{2(1+\alpha)}{\alpha}$$

celle du deuxième ordre donne

$$\left. \begin{aligned} \beta_0 &= 36,3\alpha^2 + 161\alpha + 136, \\ \beta_2 &= -40,24\alpha^2 - 34,15\alpha, \\ \beta_4 &= 12,8\alpha^2, \end{aligned} \right\} \quad (50)$$

d'où

$$z(A') = \frac{2(1 + 1,43\alpha + 0,28\alpha^2)}{\alpha(1 + 0,43\alpha)}. \quad (51)$$

La figure 4 donne les courbes c , c_1 et c_2 correspondant à la loi exacte et aux première et deuxième approximations.

Comparaison avec l'approximation des polynômes obtenus par calcul à l'origine $z = 0$. — Un procédé bien connu d'obtention d'un polynôme approché tel que (17) consiste à reporter ce polynôme dans l'équation différentielle et à annuler dans $p(z)$ les termes des premiers degrés. Appliquée à la trajectoire

impaire de la lentille hyperbolique, l'approximation du deuxième ordre correspondante donnerait

$$z(B) = \frac{\alpha(1-\alpha)}{2(1-0,75\alpha+0,6\alpha^2)}; \quad (52)$$

résultat fort différent de son homologue (48) et qu'on a reporté en c' sur la figure 3; l'examen de c' montre qu'un tel procédé serait très défectueux, son approximation du deuxième ordre étant bien inférieure à celle du premier ordre de la méthode exposée ici.

Conclusion sur la forme analytique des résultats. — Les résultats obtenus dans ce qui précède présentent une forme analytique simple prévisible d'après les équations déterminant les trajectoires : (20), (21), ...; à l'approximation du $N^{\text{ième}}$ ordre, les coordonnées de A et B sont des fractions rationnelles du $N^{\text{ième}}$ degré par rapport aux moments de v , donc par rapport aux paramètres dont dépend linéairement cette fonction, par exemple les tensions des électrodes E_1, E_2, \dots

$$\left. \begin{aligned} z(A) &= R_A(E_1, E_2, \dots), \\ z(B) &= R_B(E_1, E_2, \dots). \end{aligned} \right\} \quad (53)$$

d'où la position du foyer F

$$z(F) = \frac{1}{2} [R_A(E_1, E_2, \dots) + R_B(E_1, E_2, \dots)]. \quad (54)$$

L'arbitraire présenté avant tout calcul par les coefficients intervenant dans les fonctions R_A, R_B peut être partiellement réduit si l'on tient compte de certaines remarques évidentes, par exemple

$$R_A = 0 \quad \text{et} \quad R_B = \infty$$

pour les valeurs des paramètres qui rendent le champ nul ($\alpha = 0$ dans l'exemple précédent).

Les formules ainsi obtenues (53), (54), ... permettent diverses discussions faisant intervenir la variation des paramètres fixant le champ des tensions : E_1 , paramètres géométriques (intervention plus complexe).

Autre méthode de passage à une approximation supérieure. — Reprenons pour fixer les idées le problème d'obtention de la trajectoire impaire d'un champ symétrique en supposant v constant en dehors de la lentille. Étant donné une telle trajectoire $T_a, s(z)$ d'un ordre d'approximation donné, le deuxième par exemple, on peut passer au suivant en résolvant un système (15) comportant une équation de plus. Mais il est également possible d'obtenir une approximation meilleure de manière toute différente à l'aide de la théorie des équations différentielles.

Cherchons en effet à obtenir une trajectoire T_e « plus exacte » que T_a mais de même partie incidente,

ce qu'on notera $s(z) + \eta(z)$; $\eta(z)$ est la correction qu'il s'agit d'évaluer (fig. 4).

Il suffit de remarquer tout d'abord que les fonctions $s(z)$ et $s(z) + \eta(z)$ vérifiant respectivement les équations (7) et (5), leur différence $\eta(z)$ est solution de l'équation linéaire non homogène

$$4\nu\eta'' + 2\nu'\eta' + \nu''\eta = -p(z). \quad (53)$$

Comme, par hypothèse, la fonction $\eta(z)$ est nulle

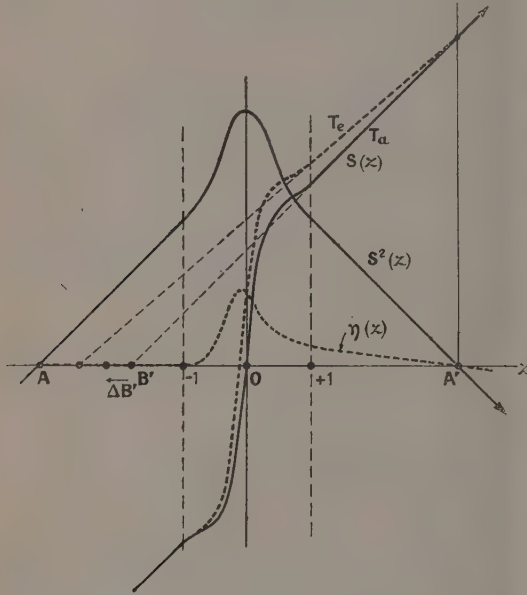


Fig. 4.

dans l'espace objet, elle est dans ces conditions parfaitement déterminée par la méthode de variation des constantes [3].

Soient à cet effet deux trajectoires particulières de la lentille $\sigma(z)$ et $\tau(z)$; on peut les supposer obtenues par l'approximation qui a fourni $s(z)$ et l'équation de $\eta(z)$ est la suivante :

$$\eta(z) = \frac{\sigma(A)\tau'(A) - \tau(A)\sigma'(A)}{\sigma(A)\int_A^z \tau \frac{p}{4\nu} \left(\frac{\nu}{\omega_0}\right)^{\frac{1}{2}} du - \tau(A)\int_A^z \sigma \frac{p}{4\nu} \left(\frac{\nu}{\omega_0}\right)^{\frac{1}{2}} du}, \quad (56)$$

la variable étant notée u sous les signes d'intégration.

Il est naturel de prendre comme σ et τ les trajectoires antisymétriques et symétriques; τ est ainsi identique à la fonction s à corriger :

$$\begin{aligned} \sigma(z) : \quad & \sigma(A) = -2f, \quad \sigma'(A) = 1, \\ \tau(z) : \quad & \tau(A') = 0, \quad \tau'(A') = 1, \end{aligned} \quad (57)$$

En raison de la relation objet image entre les plans

antiprincipaux, T_a et T_e se coupent, c'est-à-dire l'erreur $\eta(z)$ est nulle dans le plan antiprincipal image; il suffit donc de déterminer par exemple $\eta'(A')$.

Tenant compte de (57) et de ce que $p(z) \equiv 0$ en dehors de l'intervalle $(-1, +1)$, (56) donne ainsi

$$\eta'(A') = -\frac{(\omega_0)^{-\frac{1}{2}}}{8f} \int_{-1}^{+1} s\nu^{-\frac{1}{2}} p dz. \quad (58)$$

L'intersection avec Oz du support émergent de T_e est à une distance $4f\eta'(A')$ du point principal approché B' (fig. 5). T_e n'étant pas exactement antisymétrique, cette intersection ne définit toutefois pas le point principal corrigé; on verrait aisément que ce dernier est donné par une distance moitié; en d'autres termes, la rectification à faire subir à la position du point principal image B' est

$$\Delta B' = -\frac{(\omega_0)^{-\frac{1}{2}}}{4} \int_{-1}^{+1} s\nu^{-\frac{1}{2}} p dz, \quad (59)$$

ce qui peut s'écrire

$$\Delta B' = -\frac{(\omega_0)^{-\frac{1}{2}}}{4} \sum_i \sigma_i p_i$$

si l'on connaît le développement

$$s\nu^{-\frac{1}{2}} = \sum_i \sigma_i x^i.$$

On verrait de la même manière que la rectification $\Delta A'$ à faire subir au point antiprincipal A' est donnée par la même formule dans laquelle s désigne maintenant la trajectoire paire approchée.

Cette formule (57) permettra ainsi d'obtenir une meilleure approximation ou du moins d'estimer l'erreur commise dans la trajectoire approchée envisagée. Elle permet de prévoir que la méthode d'approximation exposée peut perdre son intérêt si la fonction ν tend à s'annuler en un point de la lentille, conformément à ce qu'a montré son application à la lentille hyperbolique; à moins de retouches convenables, cette méthode risquera ainsi de s'appliquer de façon défectueuse à l'étude des lentilles à immersion (cathodes émissives) et des miroirs électroniques.

Une variante de la méthode de résolution. —

On obtiendra des variantes de la méthode en adoptant d'autres fonctions que les fonctions z^k dans les expressions (1) et (3), c'est-à-dire soit pour développer les fonctions s , soit pour obtenir les équivalents des moments en vue d'exprimer la « petitesse » de la fonction $p(z)$.

On vérifie aisément que l'emploi d'un système de polynômes orthogonaux de degrés croissants redonne la même méthode, mais on peut faire appel à d'autres systèmes de fonctions de base orthogonales : fonctions trigonométriques, etc. Il faudra

s'assurer que le système choisi pour développer les fonctions $s(z)$ y soit effectivement apte, les fonctions $\cos k\pi z$ (k entier) ne suffisant pas à représenter les trajectoires symétriques du fait qu'elles ne peuvent donner que des approximations $s(z)$ pour lesquelles $s'(1) = 0$, ce qui leur ôte tout intérêt (impossibilité d'obtenir les points antiprincipaux).

Par contre, ces fonctions $\cos k\pi z$ sont parfaitement appropriées à l'expression des champs dans le cas usuel d'une loi $v(z)$ symétrique et telle que $v'(1) = 0$ (fig. 1).

On peut envisager en conséquence la méthode suivante pour déterminer, par exemple, la trajectoire symétrique d'un tel champ que l'on écrira sous forme de développement trigonométrique :

$$\left. \begin{aligned} v &= \sum_k 2V_k \cos k\pi z, \\ V_k &= \int_{-1}^{+1} v \cos k\pi z \, dz; \end{aligned} \right\} \quad (60)$$

on posera toujours s sous la forme d'un polynôme

$$s = \sum_k s_k z^k \quad (k \text{ pair}) \quad (61)$$

et l'on exprimera la « petitesse » de $p(z)$ en annulant ses premiers coefficients de Fourier, c'est-à-dire

$$P_i = 0 \quad (62)$$

en posant maintenant

$$P_i = \int_{-1}^{+1} p \cos i\pi z \, dz. \quad (63)$$

Il s'agira toujours de la méthode exposée au début, mais dans laquelle les « moments » sont maintenant les composantes de Fourier, c'est-à-dire mettent en jeu, au lieu des z^k , les fonctions $\cos k\pi z$ ou $\sin k\pi z$ suivant la parité des expressions traitées.

L'expression des P_i fait intervenir des intégrales faciles à évaluer et donne ainsi le système résolvant

$$\sum_k P_{ik} s_k = 0,$$

où

$$P_{ik} = \sum_l P_{ilk} V_l \quad (64)$$

P_{ikl} étant des nombres bien déterminés dont on

peut calculer les valeurs une fois pour toutes

$$\left. \begin{aligned} P_{ikl} &= 4k(k-1) [A_{k-2,l+i} + A_{k-2,l-i}] \\ &\quad - 2kl\pi [B_{k-1,l+i} + B_{k-1,l-i}] \\ &\quad - l^2\pi^2 (A_{k,l+i} + A_{k,l-i}), \\ A_{kl} &= \int_{-1}^{+1} z^k \cos i\pi z \, dz, \\ B_{kl} &= \int_{-1}^{+1} z^k \sin i\pi z \, dz. \end{aligned} \right\} \quad (65)$$

En ce qui concerne la trajectoire impaire, $p(z)$ étant une fonction impaire, (65) sera remplacé par

$$P_i = \int_{-1}^{+1} p \sin i\pi z \, dz, \quad (66)$$

Étant donnée la fonction potentiel sur l'axe de la lentille à trois électrodes, on conçoit que le développement (60) puisse se réduire à un très petit nombre de termes, d'où l'intérêt du procédé. Il semble qu'une expression de s à trois termes (système résolvant à deux équations) fournirait dans ce cas particulier une approximation très souvent suffisante.

La petitesse de la fonction $p(z)$ peut encore s'exprimer de manière plus directe, par exemple en

rendant minimum son carré moyen $\frac{1}{2} \int_{-1}^{+1} p^2 dz$. Sup-

posant $p(z)$ toujours mis sous forme de développement trigonométrique de coefficients P_i donnés par des formules telles que (63) ou (66), ce carré

moyen est égal à $\sum_i P_i^2$ et l'on écrira, par suite,

$$\sum_i P_i \frac{\partial P_i}{\partial s_k} = 0,$$

c'est-à-dire

$$\sum_i P_i P_{ik} = 0$$

ou, en explicitant,

$$\sum_{ll} P_{ll} P_{lk} s_k = 0. \quad (67)$$

Il s'agit toujours d'un système d'équations algébriques linéaires en s_k , dont les coefficients sont toutefois plus compliqués que dans les cas précédents.

Un prochain article précisera la question de choix des équations et examinera le cas des lentilles à immersion et des miroirs électroniques.

Manuscrit reçu le 15 décembre 1951.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] BERTEIN F. — *Comptes rendus*, 1952, 234, 417.
[2] RUDENBERG R. — *J. Frank. Inst.*, 1948, 246, 311.

- [3] GOURSAT E. — *Analyse mathématique*, 3^e édition, § 400, 401, 606.

UN SPECTROMÈTRE DE MASSE DE LABORATOIRE A USAGES MULTIPLES

Par GEORGES PHILBERT,

avec la collaboration technique de RUTH VALENTIN.

SOMMAIRE. — Un spectromètre de masse de laboratoire et d'études est décrit. Il est caractérisé essentiellement par l'emploi de pressions gazeuses relativement élevées (10^{-2} mm) dans le domaine d'ionisation : la possibilité de modifier et de permuter la source d'ions; des facilités spéciales pour l'étude de l'optique ionique. Il est complété par les circuits électriques destinés à son alimentation. Les performances et le pouvoir de résolution sont analogues à ceux des appareils de construction industrielle.

De nombreux types de spectromètres de masse ont été construits, soit dans des laboratoires, soit, en petite série et à des fins commerciales, par des sociétés industrielles. Beaucoup d'entre eux ont des

La résolution d'un problème particulier proposé par l'École Nationale Supérieure des Industries chimiques de Nancy, à savoir la réalisation d'un spectromètre de masse destiné à la détection des radicaux libres intervenant dans les réactions chimiques, a donné l'occasion de construire un appareil de laboratoire qui échappe aux inconvénients mentionnés et pour lequel les caractéristiques suivantes ont été recherchées :

1° possibilité d'adaptation à des domaines de recherches variés, et en particulier à celles exigeant des vitesses de pompage élevées;

2° agencement rendant faciles l'examen et l'emploi dans le travail courant de divers types de sources ioniques;

3° optique conçue de façon à permettre son étude systématique et son utilisation optimum dans chaque cas particulier;

4° autonomie aussi poussée que possible des divers éléments du tube spectrométrique.

Cet appareil est complété par les circuits électriques d'amplification et d'alimentation en tension et en courant nécessaires à son fonctionnement. Le montage de l'ensemble est tel que les principaux avantages d'une construction industrielle ont pu être conservés.

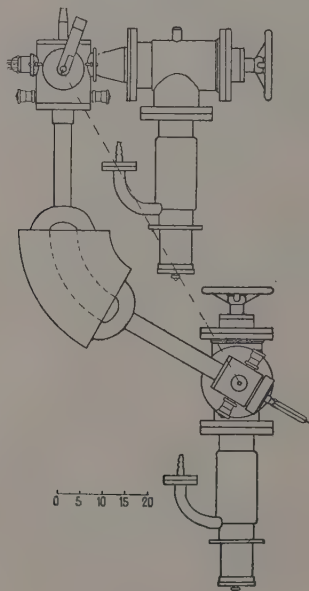


Fig. 1.

caractéristiques qui en font des appareils du plus grand intérêt aussi bien pour la recherche fondamentale que pour la recherche appliquée. Cependant ils présentent en général deux inconvénients : d'une part ils sont conçus dans un but bien déterminé et s'adaptent difficilement à des études se plaçant en marge des préoccupations des utilisateurs habituels; d'autre part ils ne permettent pas de procéder à une expérimentation systématique sur les phénomènes mis en jeu dans leur fonctionnement, qui présentent pourtant une grande importance théorique et pratique et dont la connaissance approfondie peut être nécessaire à l'interprétation correcte de certains résultats.

1. Le tube spectrométrique. — La figure 1 représente le schéma du tube spectrométrique et de ses circuits de pompage. Le tube lui-même comprend trois éléments :

1° la tête où se trouvent placées la source d'ions et les plaques d'accélération et à laquelle aboutit le dispositif d'entrée des gaz ou des vapeurs à étudier;

2° le tube analyseur placé dans un champ magnétique transversal;

3° le collecteur d'ions.

Ces éléments sont indépendants; ils s'adaptent entre eux à l'aide de joints de caoutchouc-buna graissés de forme torique.

A. Tête du spectromètre (fig. 2, 3, 4). — La tête du spectromètre est constituée par une chambre

cylindrique de bronze. Elle est limitée par une fente S_2 , parallèle au champ magnétique de déviation, qui la sépare de l'analyseur. Cette fente permet à la fois :

1° le réglage des faisceaux ioniques (suivant l'analyseur utilisé et la position du collecteur, elle peut jouer le rôle de fente-source ou bien limiter l'ouverture du faisceau ionique dans la direction radiale);

2° de réaliser une séparation relative au point de vue vide de l'enceinte où se forment les ions et du reste de l'appareil. Le trajet des ions dans la tête est beaucoup plus court qu'il ne l'est dans l'analyseur; à concentrations de gaz identiques le nombre des chocs ions-molécules y est donc plus faible; autrement dit, une pression sensiblement plus élevée y est tolérable. Ceci est avantageux en particulier lorsqu'il est nécessaire d'admettre dans la boîte d'ionisation des quantités de gaz relativement importantes (cinétique chimique).

La fente séparatrice S_2 se règle sous vide. Elle est constituée par deux lames de molybdène épaisses de 0,5 mm. Chacune d'elles est poussée vers l'intérieur de l'enceinte à l'aide d'une tige glissant le long d'une manchette de caoutchouc-buna (graissée) qui assure l'étanchéité du système. La tige, dont l'entraînement se fait à l'aide d'un pas de vis, est solidaire d'un bouton muni d'un vernier qui se déplace sur un anneau gradué. Le mouvement de retour de la lame est provoqué par un ressort placé dans le vide. Avec ce dispositif, il est possible de repérer ouvertures et positions des fentes à quelques centièmes de millimètre près, précision qui, pour les recherches courantes de spectrométrie de masse, est suffisante.

À la partie supérieure de la cavité cylindrique, et travaillée directement dans le métal qui la constitue, se trouve une collerette sur laquelle se place et se verrouille l'ensemble constitué par la source d'ions et le système optique des plaques d'accélération. Cet ensemble est monté sur un plateau de duralumin épais de 6 mm percé d'un trou au centre. Les éléments (émission des électrons et plaques d'accélération) en sont portés par deux tiges d'aluminium, isolées par des pièces de stéatite et connectées à des anneaux de cuivre répartis sur une troisième tige d'aluminium. Le long de la paroi de la chambre se trouve une série correspondante de contacts fixes en forme de pinces à l'intérieur desquels viennent s'enserrer les anneaux de cuivre lors du verrouillage.

La figure 4 donne une vue en perspective de la source d'ions actuellement en service. Le filament et l'électrode le blindant forment une pièce autonome fixée à un anneau d'aluminium; l'emploi de plusieurs pièces analogues permet de procéder au remplacement du filament (tungstène ou tungstène thorié) par simple permutation. Les plaques accé-

lératrices sont en molybdène, la construction de la

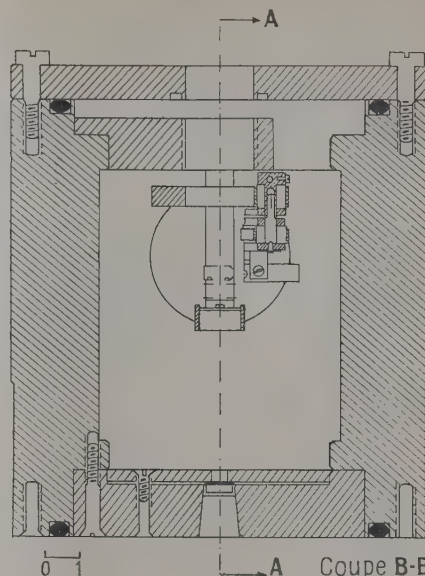


Fig. 2.

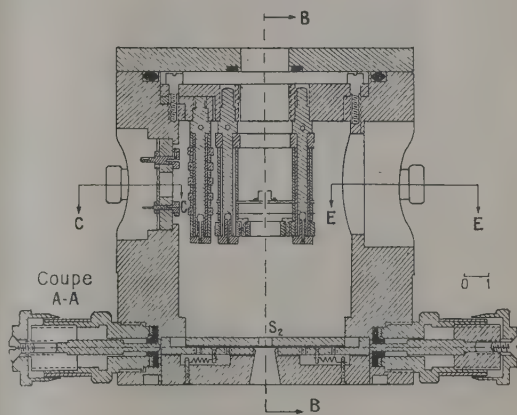


Fig. 3.

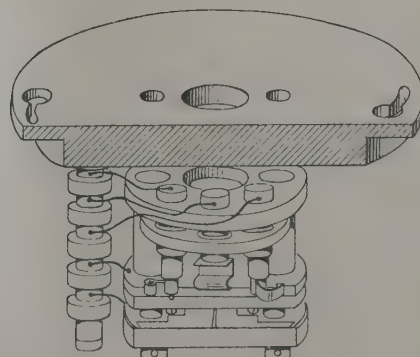


Fig. 4.

dernière (fente-objet) est telle que la largeur et la position du diaphragme puissent être modifiées lors du démontage.

Il résulte de cette description que le dispositif

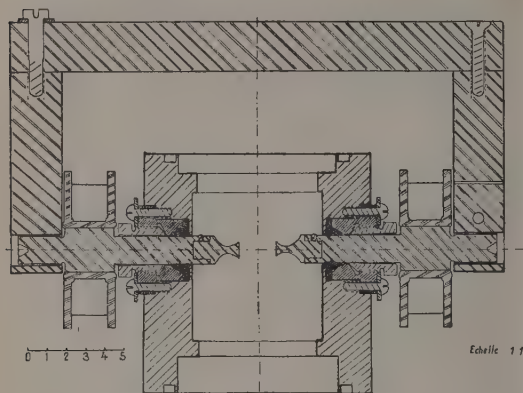


Fig. 5.

de production des ions se modifie suivant l'un ou l'autre des modes suivants :

par remplacement de l'ensemble : la seule condition est que le dispositif de mise en place et de verrouillage des contacts s'adapte sur la partie fixe de la tête du spectromètre de masse ;

par remplacement d'une partie de la source : les modifications n'exigent pas le démontage du tube, mais seulement celui de l'ensemble « boîte d'ionisation-plaques d'accélération ».

Les entrées électriques se font latéralement, en C-C. Les contacts fixes en forme de pinces décrits précédemment sont reliés à une fiche femelle constituée par un disque de stéatite ; il lui correspond une fiche mâle analogue, liée à des fils de ferrochrome traversant un tube de verre, lequel est soudé (par l'intermédiaire de ferrochrome) à une flasque s'appliquant sur un évidement ménagé dans la paroi de bronze. La fiche femelle est fixée à force sur le métal, la fiche mâle montée sur la flasque.

Les fils de ferrochrome, au nombre de sept, ont un diamètre de 1,2 mm. Ils laissent passer des courants de 10 A environ. La résistance totale du système de contact ne dépasse pas quelques dixièmes d'ohm.

Beaucoup de sources comportent un aimant. Dans la construction décrite il a été fait choix d'un électro-aimant, et ses surfaces polaires sont placées à l'intérieur du tube. Elles sont fixées (fig. 5) à deux pièces cylindriques de fer traversant les parois de la tête du spectromètre et pouvant glisser le long de manchettes de caoutchouc-buna ; un réglage de la position est ainsi possible. Les bobines et la culasse de l'électro-aimant sont à l'extérieur de la surface vidée. Une forme et une position quelconques peuvent être données aux pôles. La disposition adoptée réduit l'entrefer (et donc le champ de fuite

parasite) à la valeur minima compatible avec la disposition d'une source donnée. Elle était d'ailleurs rendue pratiquement obligatoire par le très large dimensionnement de la tête.

Le fer choisi est un fer à haute perméabilité (qualité Hyperm) dont les surfaces non poreuses sont adaptées à la construction d'enceintes vidées.

B. Tube analyseur. — L'analyseur équipant le spectromètre de masse est du type à champ magnétique en forme de secteur (60°). Le tube actuel est d'une pièce, en cuivre rouge, écrasé dans sa partie centrale ; son diamètre est de 35 mm, suffisant pour permettre une vitesse de pompage raisonnable. Le rayon de courbure de la trajectoire des ions recueillis est de 20 cm. A ses deux extrémités le tube porte une flasque de bronze sur laquelle s'appuient les deux autres éléments du spectromètre (tête et collecteur). Elles sont percées d'un canal

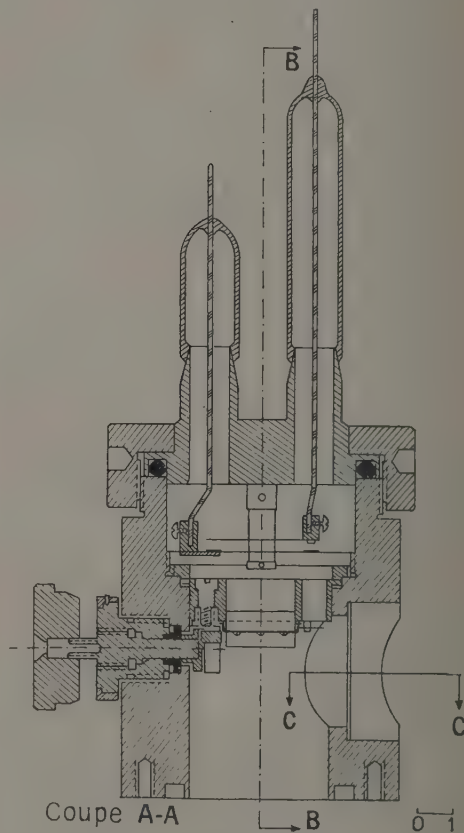


Fig. 6.

circulaire à travers lequel peut passer un courant d'eau de réfrigération, nécessaire si l'on désire chauffer le tube.

C. Collecteur (fig. 6). — La construction de la pièce destinée à recevoir le collecteur s'inspire des

mêmes principes que celle de la tête. Elle est constituée par un pot cylindrique en duralumin équipé d'un montage fixe comportant la fente de réception destinée à isoler les ions de masses déterminées. Elle est réglable en position, en largeur et en orientation, ce qui permet un alignement correct avec la fente-objet. Le dispositif de réglage en position et en largeur est le même que celui de la fente S_2 . Le réglage en orientation se fait à l'aide d'une tige manœuvrable de l'extérieur et passant à l'intérieur d'une manchette de caoutchouc-buna. Elle porte à son extrémité un disque muni d'une pointe excentrée dont la rotation provoque un mouvement de va-et-vient de la fente de quelques degrés autour de son axe.

Le pot se termine par un couvercle de ferrochrome démontable tenu par un anneau d'aluminium. Il porte deux électrodes : la plaque collectrice et une plaque percée d'un trou ou une grille pouvant être portée à un potentiel positif ou négatif par rapport à la première. Les sorties se font par des fils de ferrochrome soudés à des tubes de verre raccordés au couvercle. Les électrodes, en molybdène, sont portées par des tiges d'aluminium et isolées à l'aide de bâtonnets de quartz ou de stéatite.

D. Circuits de vide. — Le dispositif d'évacuation comprend deux circuits de vide secondaire :

1° un circuit aboutissant sur la source d'ions, composé de la pompe à diffusion, d'une soupape à large voie, d'une canalisation métallique et, en dérivation sur celle-ci, d'une jauge d'ionisation et d'un manomètre Knudsen (¹). La vitesse de pompage sur la source est d'environ 20 l/s entre 10^{-4} et 10^{-5} mm;

2° un circuit aboutissant sur le collecteur, composé de la pompe, de la soupape et de la canalisation de raccordement. Ce circuit évacue le tube et le collecteur. La vitesse de pompage sur le collecteur est d'environ 15 l/s.

Les pompes à diffusion sont des pompes à diffusion d'huile Leybold Q 3. L'huile utilisée est de la qualité K. Le vide primaire est fourni par une pompe Leybold modèle V.

Les essais de vide ont donné les résultats suivants :

Remontée de pression mesurée au manomètre McLeod (gaz permanents) 10^{-3} mm : h.

Remontée de pression mesurée au manomètre Knudsen (pression totale) $3 \cdot 10^{-3}$ mm : h.

Vide limite : mesuré au manomètre Knudsen, environ 10^{-5} mm. La valeur du vide limite est due à la tension de vapeur des huiles. Les pompes Leybold sont construites en cuivre; il y a action catalytique du métal sur la décomposition de l'huile.

(¹) La construction originale ne comportait pas de manomètre Knudsen; son installation est due à MM. Duval et Le Goff (Nancy), qui ont fait les mesures de vide dont les résultats sont donnés dans le texte.

Des pompes nickelées conviendraient probablement mieux. Si l'on se réfère aux données de remontée de pression, elles devraient permettre, équipées d'une huile convenable, d'atteindre des vides limites de qualité à peine inférieure à ceux des tubes spectro-métriques de construction usuelle.

La jauge Philips permet une évaluation approximative du vide et, grâce à sa réponse immédiate, un contrôle facile des perturbations éventuellement apportées par l'introduction des gaz à analyser.

2. Electro-aimant analyseur. — L'électro-aimant analyseur d'un spectromètre de masse doit satisfaire à un certain nombre de conditions :

a. Homogénéité du champ dans tout l'espace utile.

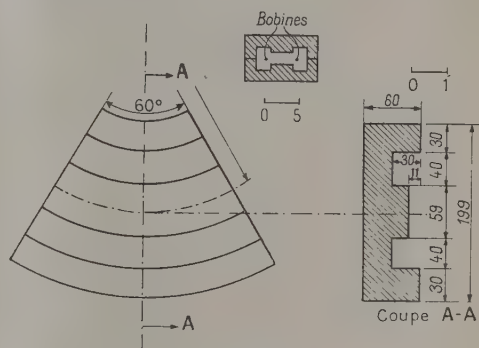


Fig. 7.

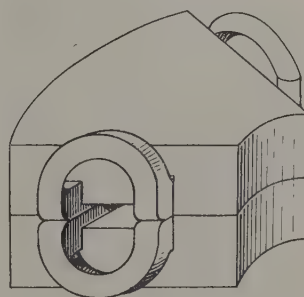


Fig. 8.

b. Dans la mesure du possible : proportionnalité du champ au courant, ceci afin de faciliter les mesures.

c. Hystérèse faible (pour permettre les mesures des spectres par balayage magnétique), ou, plus exactement, boucle d'hystérésis étroite telle que la fonction $H = f(I)$, où I est le courant d'excitation et H le champ, soit univalente dans les limites de précision des mesures.

d. Entrefer large, de façon à permettre l'utilisation d'un tube de diamètre suffisant pour être évacué sans difficulté.

Ces exigences ne sont pas toutes compatibles. La

construction adoptée semble satisfaire au mieux possible la plupart d'entre elles, et avoir l'avantage de procurer un aimant de poids raisonnable (40 kg environ). Les figures 7 et 8 donnent une coupe de la carcasse et une vue en perspective. Le fer est de la marque « Minimum », fournie par les Établissements « Bochumer Verein » (Bochum); les bobines sont en fil de cuivre laqué de 3/10^e de millimètre. L'entrefer a 20 mm. C'est là une valeur relativement élevée, qui ne permet pas de réaliser un champ homogène à mieux que 1/40^e près sur la totalité de l'entrefer. Au voisinage de la circonférence moyenne l'homogénéité est naturellement bien meilleure (de l'ordre de 1/150^e). L'allure du champ de fuite est représentée sur la figure 9. Le champ réma-

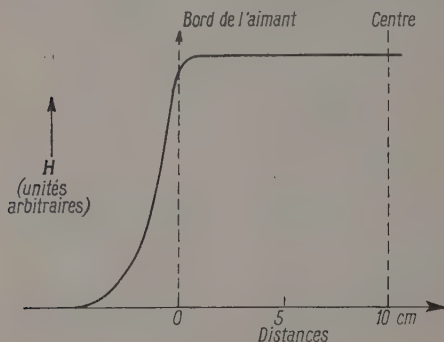


Fig. 9.

nent est égal à environ 5 pour 100 du champ d'excitation. La boucle d'hystérésis est assez étroite pour que les valeurs trouvées pour le champ soient les mêmes, à 2 pour 1000 près, que le cycle soit décrit dans un sens ou dans l'autre (ces mesures ont été effectuées par la méthode balistique ou, plus simplement et avec plus de précision, par repérage des sommets des pics de masses dans le spectromètre de masse).

Avec un courant d'excitation de 300 mA, le champ est d'environ 3 000 Oe; la puissance d'excitation requise varie alors entre 150 et 200 W suivant la température des bobines.

Un tube analyseur à paroi de fer doit être prochainement adapté; l'entrefer se trouvera réduit à 10 mm; il en résultera une diminution sensible du champ de fuite, de l'inhomogénéité et de la puissance d'excitation à champ donné.

3. Circuits électriques. — Ainsi qu'il est habituel, l'alimentation électrique des différents organes du spectromètre de masse se fait par des circuits régulés par tubes-radio fonctionnant sur la tension du secteur (en l'espèce 220 V). La mesure du nombre d'ions collectés est effectuée au moyen d'un montage à tube électrométrique suivi d'un amplificateur.

Pour la construction des châssis et leur assemblage, le principe qui nous a guidés dans le montage du tube

spectrométrique, à savoir l'autonomie des divers constituants, a été respecté. Les circuits sont câblés sur des châssis qui, à l'exception de l'amplificateur, se glissent à l'intérieur d'une armoire; les instruments de contrôle de leur fonctionnement sont placés sur les plaques avant, les instruments de mesure intéressant le spectromètre de masse lui-même sur une table horizontale. Les liaisons entre châssis, entre châssis et table de mesure et avec le tube spectrométrique se font par l'intermédiaire d'un tableau général de connexion au moyen de fiches mobiles.

A. Alimentation en haute tension. — La boîte d'ionisation doit être portée à un potentiel stable variant de quelques centaines à quelques milliers de volts par rapport à la terre; les autres électrodes à des potentiels compris entre ceux de la boîte d'ionisation et ceux de la terre. La figure 10 donne le schéma adopté pour la production et la stabilisation d'une tension comprise entre 800 et 2 100 V environ; les différents voltages nécessaires sont obtenus à l'aide d'un montage classique à tubes à gaz. Le tube ballast SIF 40/600 est adapté à l'établissement d'une tension statique de plus de 3 000 V entre cathode et plaque. Le chauffage du premier tube amplificateur (AF 7) est stabilisé par une résistance fer-hydrogène. Les condensateurs sont destinés, soit à éviter les courants induits à la sortie, soit à supprimer des couplages indésirables favorisant la production d'oscillations de relaxation ⁽¹⁾.

La stabilité de la tension de sortie est d'environ $2 \cdot 10^{-4}$ en valeur relative pour des variations de 10 pour 100 de la tension du secteur. La dérive en 1 h est du même ordre de grandeur.

Comme dans tous les autres circuits, tensions de référence et de couplage entre étages d'amplification sont fournies par des piles sèches. Cette méthode à l'avantage de simplifier le schéma et les recherches en cas d'avarie; les piles ne débitant pas, elles n'ont, après 18 mois de fonctionnement, donné aucun signe de vieillissement. Le remplacement ne présente d'ailleurs pas de difficulté.

B. Émission des électrons (fig. 11). — Le courant d'émission électronique est régulé par contre-réaction sur le chauffage du filament. Celui-ci est alimenté par un circuit constitué successivement d'un transformateur dont le primaire est lié au secteur, et dont le secondaire débite sur une résistance fer-hydrogène suivie du primaire d'un deuxième transformateur; en parallèle avec ce dernier est monté un tube EL 41. Le secondaire débite sur le filament; la grille de contrôle du EL 41 est commandée par le courant d'émission électronique. L'inertie du tube fer-

⁽¹⁾ Nous signalons que nous avons observé dans tous nos montages à contre-réaction en continu une tendance à la production d'auto-oscillations basse fréquence ou moyenne fréquence.

hydrogène est du même ordre de grandeur que celle du filament et n'est pas gênante.

Le courant électronique est ainsi rendu largement

indépendant de la tension du secteur et de la structure du filament. Le réglage ne s'effectue que dans un domaine d'environ 10 pour 100 de part et d'autre

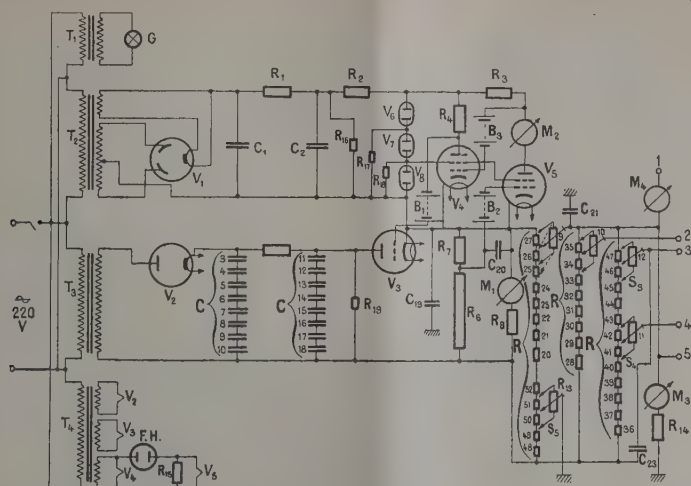


Fig. 10. — Alimentation 2 kV.

T_1 , transformateur 220 V/6,3 V. — T_2 , transformateur 220 V/2 \times 500 V; 4 V. — T_3 , transformateur 220 V/2 500 V. — T_4 , transformateur 220 V/3 V; 4 V; 12,6 V. — V_1 , AZ 1. — V_2 , AG1006. — V_3 , SIF 50/600. — V_4 , UF 41. — V_5 , AF 7. — V_6 , LK 131. — M_1 , voltmètre 0-2 500 V. — M_2 , milliampèremètre 0-4 mA. — M_3 , voltmètre 0-2 500 V. — C_1 , 1 μ F. — C_2 , 16 μ F. — C_3 , 1 μ F. — C_4 , 4 μ F. — C_5 , 0,25 μ F. — R_1 , 2,5 k Ω . — R_2 , 4 k Ω . — R_3 , 50 k Ω . — R_4 , 100 k Ω . — R_5 , 20 k Ω . — R_6 , 720 k Ω . — R_7 , 80 k Ω . — R_8 , 50 k Ω . — R_9 , 800 k Ω . — R_{10} , 10 k Ω . — R_{11} , 25 k Ω . — R_{12} , 400 k Ω . — R_{13} , 5 k Ω . — S_1 , ..., 5, interrupteurs à six positions.

de la valeur moyenne du courant, ce qui d'ailleurs est souhaitable pour éviter des accidents qui se produiraient inévitablement si des phénomènes venaient à intervenir, qui auraient pour effet de réduire considérablement l'émission électronique. L'adaptation grossière se fait par une résistance en série avec le filament.

Le montage permet de varier le courant électronique et la tension d'accélération (stabilisée par tubes à gaz).

C. Alimentation de l'électro-aimant (fig. 12). — Elle donne un courant stabilisé de toute valeur comprise entre 50 et 550 mA sur une résistance de sortie atteignant 800 Ω . La tension produite sur une résistance de manganine par le courant à stabiliser est comparée à une tension fixe (pile); la différence est amplifiée, ramenée aux grilles de six tubes 6 L 6. Le chauffage du premier tube amplificateur (6 J 7) est stabilisé par une résistance fer-hydrogène. Son courant est contrôlé par un milliampèremètre, celui des valves et des tubes ballast à l'aide de lampes mignonnettes, qui jouent en même temps le rôle de fusibles. On vérifie ainsi l'équilibre de fonctionnement des éléments parallèles aux intensités élevées.

La variation du courant magnétisant se fait par

un système de résistances et de potentiomètres commandé par un commutateur à quatre voies

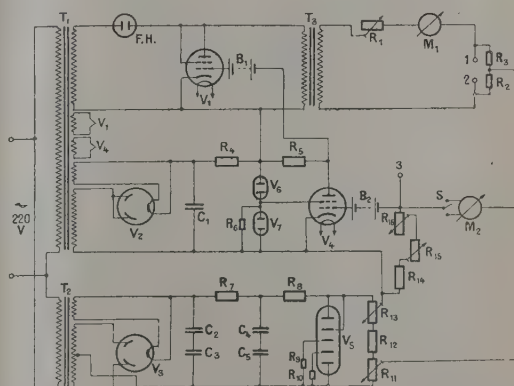


Fig. 11. — Alimentation filament et tension électronique.

T_1 , transformateur 220 V/250 V; 6,3 V; 6,3 V; 4 V; 300 V. — T_2 , transformateur 220 V/2 \times 500; 4 V. — V_1 , EL 41. — V_2 , AZ 11. — V_3 , AZ 1. — V_4 , EF 41. — V_5 , StV 280/40. — V_6 , 7475. — F. H., résistance fer-hydrogène. — M_1 , ampèremètre 0-3 A. — M_2 , voltmètre 0-20 et 0-200 V. — C_1 , 4 μ F. — C_2 , 8 μ F. — R_1 , 15 Ω . — R_2 , 100 k Ω . — R_3 , 25 k Ω . — R_4 , 15 k Ω . — R_5 , 1,7 k Ω . — R_6 , 5 k Ω . — R_7 , 1 k Ω . — R_8 , 2 k Ω . — R_9 , 5 k Ω . — R_{10} , 40 k Ω . — R_{11} , 50 k Ω . — R_{12} , 250 k Ω . — B 1, 2, 50 V (piles).

et trois étages agissant en même temps sur les sorties du transformateur principal. Les mesures des faibles variations de courant sont rendues

possibles par utilisation d'un shunt sur les bobines de l'aimant, constitué par un tube 6 L 6 en montage cathodyne avec tension de grille variable.

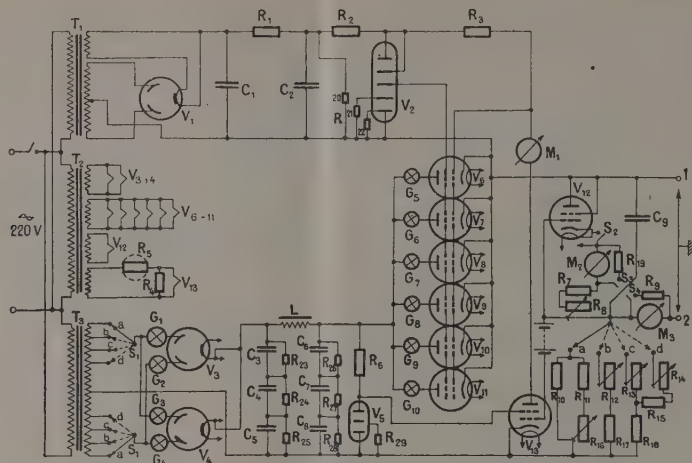


Fig. 12. — Alimentation électro-aimant.

T_1 , transformateur 220 V/2 × 500 V; 4 V. — T_2 , transformateur 220 V/5 V; 6,3 V; 6,3 V; 12,6 V. — T_3 , transformateur 220 V/2 × 700 V (sorties à 600, 500, 400 V). — V_1 , AZ 1. — V_2 , St V 280/80. — $V_{3,4}$, 5 Z 3. — V_5 , St V 150/20. — $V_{6...12}$, 6 L 6. — V_{13} , 6 M 7. — M_1 , 0-4 mA. — M_2 , 0-10 mA; 0-20 mA avec shunt. — M_3 , 0-250 mA; 0-500 mA avec shunt. — $C_{1,2}$, 2 μ F. — $C_{3,9}$, 32 μ F. — R_1 , 500 Ω . — R_2 , 3,5 k Ω . — R_3 , 100 k Ω . — $R_{4,5}$, 30 k Ω . — R_7 , 1 k Ω . — R_8 , 5 k Ω . — R_9 , résistance de shunt pour M_3 . — $R_{10...18}$, résistance de réglage du courant principal de l'électro-aimant. — R_{19} , résistance de shunt pour M_2 . — S_1 , interrupteur à quatre positions. — B_1 , pile 75 V. — $G_{1...4,9}$ lampes mignonnettes, 300 mA. — $G_{5...10,9}$ lampes mignonnettes, 100 mA.

La stabilité du courant est en valeur relative d'environ 10^{-4} pour des variations de 10 pour 100 de la résistance d'utilisation (en l'espèce, ces variations sont dues à l'échauffement des bobines) et de $4 \cdot 10^{-4}$ pour des variations de 10 pour 100 de la tension du secteur. Cette dernière stabilité est

améliorée si l'on remplace le tube 6 M 7 par un tube 1 L 4, chauffé par une pile de 1,4 V.

D. Alimentation de l'électro-aimant directeur. — Le montage actuel (200 V, courant réglable jusqu'à 50 mA) est simplement stabilisé en tension. Un circuit en cours de câblage doit donner un courant stabilisé de 100 mA sous 400 V et permettre l'utilisation de champs plus intenses.

E. Amplificateur (fig. 13). — Il s'agit d'un circuit à contre-réaction. Les tensions de chauffage et de plaque du tube électromètre (AEG.T 113 dans le montage actuel) sont fournies par des batteries de piles, celles des tubes suivants par l'alimentation stabilisée prévue à cet effet. Une fraction égale à environ $1/15^e$ de la tension de sortie est utilisée pour la contre-réaction.

Le tube électromètre, la résistance de fuite et la sortie du collecteur du spectromètre de masse sont placés dans une enceinte à parois de fer et atmosphère desséchée.

La mesure des courants ioniques amplifiés se fait au moyen d'un voltmètre ou d'un millivoltmètre et, dans les cas où une précision plus grande est requise, d'un galvanomètre monté en voltmètre.

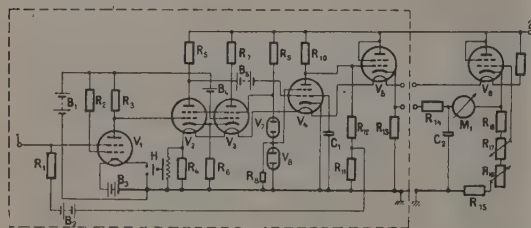


Fig. 13. — Amplificateur.

V_1 , T 113 AEG. — $V_{2,3}$ UF 42. — $V_{4...6,9}$ UL 41. — $V_{7,8}$, LK 131. — C_1 , 1000 pF. — C_2 , 6 μ F. — R_1 , résistance comprise entre $5 \cdot 10^8$ et $3 \cdot 10^{11}$ Ω selon les cas. — R_2 , 5 k Ω . — R_3 , 10 k Ω . — R_4 , 25 k Ω . — R_5 , 700 Ω . — R_6 , 25 k Ω . — R_7 , 4 k Ω . — R_8 , 10 k Ω . — R_{11} , 6 k Ω . — R_{12} , 100 k Ω . — R_{13} , 5 k Ω . — R_{14} , 10 k Ω . — R_{15} , 5 k Ω . — R_{16} , 500 Ω . — R_{17} , 50 Ω . — R_{18} , 20 Ω . — R_{19} , 1000 Ω . — B_1 , 9 V. — B_2 , 12 V. — B_3 , 3 V. — B_4 , 1,5 V. — B_5 , 90 V. — H , relais commandé par le courant de chauffage des tubes V_2, \dots, V_8 et contrôlant le circuit de chauffage de V_1 .

Un dispositif d'enregistrement sur oscillographe a été expérimenté et son montage définitif est en cathodique avec balayage magnétique des lignes cours.

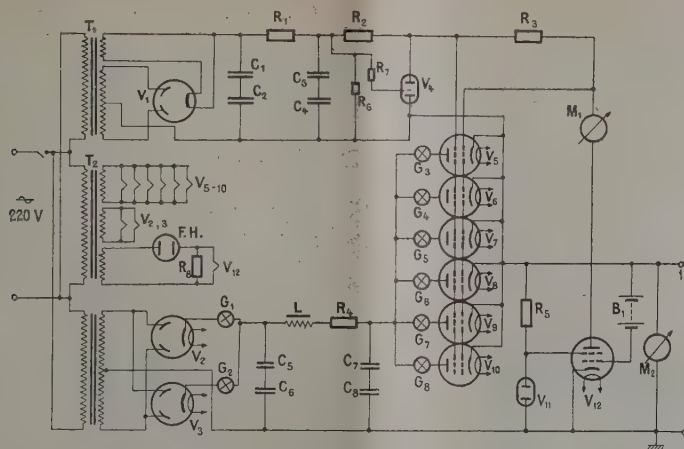


Fig. 14. — Alimentation amplificateur.

T_1 , transformateur 220 V/2 \times 500 V; 4 V. — T_2 , transformateur 220 V/6,3 V; 12,6 V. — T_3 , transformateur 220 V/2 \times 600 V. — V_1 , AZ 1. — $V_{2,3}$, RG 12/D300. V_4 , LK 131. — $V_{5,10}$, 6 Y 6. — V_{11} , St V 100/25. — M_1 , 0-4 mA. — M_2 , 0-300 V. — $C_{1...42}$, 8 μ F. — $C_{5...8}$, 16 μ F. — R_1 , 1,7 k Ω . — R_2 , 5 k Ω . — R_3 , 50 k Ω . — R_4 , 250 Ω . — R_5 , 24 k Ω . — B_1 , 280 V. — $G_{1,8}$, lampes mignonnettes (100 et 300 mA). — L , self de choc.

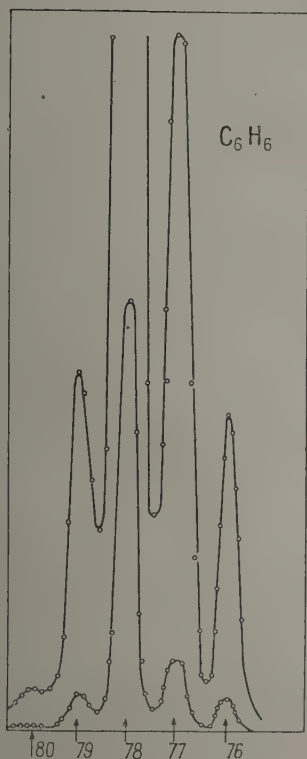


Fig. 15.

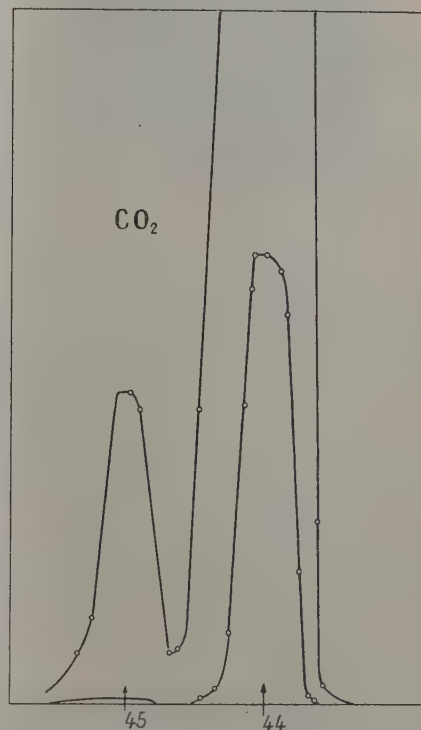


Fig. 16.

F. *Alimentation de l'amplificateur (fig. 14).* — Elle est, dans son principe, semblable à celle de l'électro-aimant, mais simplifiée du fait que la stabilisation se fait en voltage et pour une tension fixe (280 V). Le courant qu'elle peut débiter est de 350 mA. Les dispositifs de contrôle sont les mêmes que dans le circuit de l'électro-aimant.

4. *Assemblage général et performances.* — Le tube spectrométrique et ses circuits de vide d'une part, les châssis électriques d'autre part, sont placés dans deux armoires métalliques séparées. (fig. 17). Le dispositif d'introduction des gaz est totalement indépendant; il fait dans chaque cas



Fig. 17.

l'objet d'une installation particulière et n'est pas partie organique du spectromètre de masse.

Nous donnons à titre d'indication (fig. 15 et 16) la reproduction d'un spectre de CO_2 (raies $^{12}\text{CO}_2$ et $^{13}\text{CO}_2$) et d'un spectre de C_6H_6 obtenus dans des conditions d'utilisation normale. Le pouvoir séparateur est sensiblement analogue à celui de la plupart des spectromètres de masse courants. Il pourra d'ailleurs être amélioré par l'emploi d'une optique plus soignée (en particulier celle du champ magnétique). Mais ce résultat n'a pas encore été recherché car il paraît préférable de se livrer d'abord à une étude approfondie de l'optique des différents éléments. Les premières indications recueillies montrent que, avec un filtre de vitesse devant le collecteur un pouvoir séparateur de $1/500^\circ$ (définition des spectroscopistes) est réalisable.

La construction de l'appareil s'est déjà et est appelée à se montrer particulièrement commode dans toutes les recherches où il y a intérêt à pouvoir

varier les conditions d'utilisation. Ainsi, si on désire étudier les problèmes d'optique ionique de la source, il est commode d'utiliser une fente de sortie large, permettant de recevoir tous les ions d'une masse donnée, même si de légères variations du potentiel auquel ils sont formés viennent à se produire. Si, au contraire, on désire avoir un pouvoir séparateur optimum, on utilisera une fente de sortie fine. Un travail préalable permettra le cas échéant d'évaluer quelles erreurs éventuelles introduit une fente telle que le collecteur ne reçoive pas en même temps tous les ions d'une masse donnée. Dans des cas très particuliers, une détection par plaque photographique peut être envisagée. Parmi les possibilités d'utilisation, nous indiquerons :

1° Les recherches sur la production des ions, leur injection dans l'analyseur et leur focalisation dans les champs magnétiques;

2° les recherches sur les sources d'ions travaillant sous des pressions de gaz relativement élevées (supérieures à 10^{-2} mm), les mesures des probabilités d'ionisation, l'influence des gaz étrangers sur celles-ci;

3° les études des réactions chimiques et des radicaux libres qui y interviennent.

Quelques-unes de ces questions ont été déjà abordées et les premiers résultats ont montré qu'elles valent effectivement la peine d'être examinées et que, à ce point de vue, la construction d'un spectromètre de masse conçu comme le nôtre méritait d'être entreprise.

Par contre, nous ne croyons pas que, dans son état actuel notre appareil soit adapté à l'analyse de mélanges dont de très petites quantités seulement seraient disponibles ou qui devraient être ionisés sous très faible pression (10^{-4} mm), ceci en raison de la quantité relativement importante des gaz d'absorption résiduels (CO , H_2O) et plus encore de l'emploi de pompes à diffusion d'huile fonctionnant à une tension de vapeur de l'ordre de 10^{-6} mm.

La construction du spectromètre de masse a été effectuée, grâce à un crédit du C.N.R.S., à l'Institut M. Planck f. Physik de Hechingen (ex K.W.I. f. Physik de Berlin). Je remercie M. le Professeur Gentner, Directeur de la section de Physique nucléaire de cet Institut et M. Weimer, Sous-Directeur, des moyens matériels qu'ils ont mis à ma disposition. J'exprime ma reconnaissance à M. le Professeur Bauer, qui m'a conseillé ce travail, à MM. les Professeurs Grivet et Letort, et à M. Gondet, Directeur général des Laboratoires de Bellevue, qui ont bien voulu s'y intéresser et me faire bénéficier de leur appui.

Enfin je tiens à dire toute ma gratitude à M. le Professeur Joliot pour l'appui qu'il m'a donné au cours de mon séjour en Allemagne.

LOCALISATION PRÉCISE D'UN MAXIMUM OU D'UN MINIMUM DE TRANSMISSION EN FONCTION DE LA LONGUEUR D'ONDE. APPLICATION A LA PRÉPARATION DES COUCHES MINCES

Par PIERRE GIACOMO et PIERRE JACQUINOT.

Laboratoire Aimé Cotton, C. N. R. S., Bellevue.

Sommaire. — Au moyen d'un miroir vibrant, on produit une petite variation périodique $\delta\lambda$, de fréquence N , de la longueur d'onde λ envoyée sur l'objet à étudier. Le flux transmis (ou réfléchi) est reçu sur une cellule dont le courant est amplifié en courant alternatif. L'annulation (et l'inversion) de la composante de fréquence N de ce courant se produit pour les longueurs d'onde pour lesquelles la transmission (ou réflexion) passe par un maximum ou un minimum. L'annulation de la composante de fréquence $2N$ a lieu pour les points d'inflexion.

La méthode, qui peut être sensible, permet l'étude très rapide des filtres (position et largeur de la bande passante). On indique dans quel cas la sélectivité propre de l'appareil peut être gênante et comment on peut y remédier. La méthode permet, en outre, de régler exactement à un multiple de $\frac{\lambda}{4}$ l'épaisseur optique d'une couche diélectrique pendant sa préparation.

1. Introduction. — Lorsqu'une lame, transparente ou réfléchissante, possède une sélectivité en fonction de la longueur d'onde, il n'est pas toujours nécessaire de connaître toute la courbe représentant la variation $y = f(\lambda)$ de son facteur de transmission ou de réflexion; il est souvent suffisant de savoir où sont placés les maxima et les minima de cette courbe et éventuellement ses points d'inflexion. La localisation des maxima et minima par tracé de la courbe $y = f(\lambda)$ ou par observation directe d'une grandeur proportionnelle à y est en général peu précise, car y est alors stationnaire.

L'objet du présent travail est de décrire une méthode permettant d'observer directement des grandeurs proportionnelles aux dérivés $\frac{dy}{d\lambda}$ et $\frac{d^2y}{d\lambda^2}$; puisque ces dérivés varient vite et changent de signe au voisinage des points intéressants, maxima, minima et inflexion, on peut espérer obtenir ainsi une localisation bien plus précise et rapide que par les autres méthodes. Cette méthode peut avoir de nombreuses applications, par exemple pour la mesure des filtres ou pour l'étude et la préparation de couches minces.

2. Principe de la méthode. — 2.1. L'objet dont on veut étudier la transmission (ou réflexion) est éclairé par une étroite bande spectrale, de longueur d'onde λ_0 prélevée dans le spectre continu d'une source lumineuse, telle qu'une lampe à incandescence alimentée en courant continu. Cette longueur d'onde λ_0 peut être modifiée continûment de façon à explorer tout le spectre. En outre, la longueur d'onde utilisée est « modulée » suivant la loi

$$\lambda = \lambda_0 + a \cos 2\pi Nt,$$

à une fréquence N de l'ordre de quelques dizaines de périodes par seconde, la profondeur de modulation a étant petite devant λ_0 . Le flux transmis est recueilli par une cellule photoélectrique dont le courant amplifié, proportionnel au flux, varie donc suivant la loi

$$i = A y(\lambda_0 + a \cos 2\pi Nt).$$

Le coefficient A , fonction d'appareil, peut présenter lui-même une sélectivité due principalement à la source lumineuse et à la cellule employée et être fonction de la longueur d'onde. Mais, nous commencerons par supposer que A est indépendant de λ . L'amplitude de modulation a étant petite, on peut développer suivant les puissances de a et écrire

$$i = A \left[y(\lambda_0) + a \cos 2\pi Nt \left(\frac{dy}{d\lambda} \right)_0 + \frac{a^2}{2} \cos^2 2\pi Nt \left(\frac{d^2y}{d\lambda^2} \right)_0 + \dots \right].$$

Le courant comprend d'abord une composante continue de valeur

$$I_0 \simeq A y(\lambda_0),$$

puis une composante i_1 de fréquence N , d'amplitude

$$I_1 \simeq A a \left(\frac{dy}{d\lambda} \right)_0$$

et une composante i_2 de fréquence $2N$, d'amplitude

$$I_2 \simeq A \frac{a^2}{2} \left(\frac{d^2y}{d\lambda^2} \right)_0.$$

Si l'on amplifie seulement les composantes alternatives du courant i , on peut amplifier suffisamment pour pouvoir apprécier avec précision les valeurs

de λ_0 qui rendent nuls les termes i_1 ou i_2 et localiser ainsi les maxima et les points d'inflexion.

La localisation des points d'inflexion peut être très utile dans le cas des filtres à bande relativement étroite : en effet, on peut définir une largeur de bande passante comme étant la différence des abscisses des points d'inflexion de la courbe $y(\lambda)$ (fig. 1) et cette définition donne, en général, des largeurs peu différentes des définitions conventionnelles.

L'observation des composantes i_1 et i_2 peut se faire, soit par amplification sélective sur les fréquences N et $2N$, soit plus simplement en observant

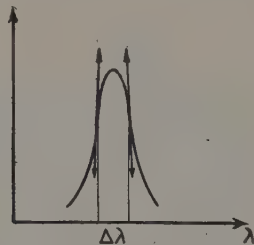


Fig. 1. — Largeur de bande définie par les points d'inflexion.

le courant $i_1 + i_2$ sur un oscilloscope qui permet de juger très facilement de la disparition d'une des composantes.

2.2 NORMALISATION. — Le coefficient A des expressions précédentes contient la brillance de la source lumineuse, l'étendue des faisceaux, les transparences des divers organes optiques, la réponse de la cellule et le gain de l'amplificateur; il peut varier très notablement d'une partie du spectre à l'autre et présente, en général, un maximum vers le milieu du spectre visible. Il est avantageux de normaliser les valeurs des courants I_1 et I_2 ; pour cela on asservit le gain de l'amplification à la valeur de la composante continue I_0 , de telle sorte que $I_0 = Ay$ garde une valeur constante C ; si y ou l'un des facteurs précédents varie, on a alors

$$I_0 = Ay = C, \quad \text{d'où} \quad A = \frac{C}{y}$$

et

$$I_1 = C \alpha \frac{1}{y} \frac{dy}{d\lambda}, \quad I_2 = C \frac{\alpha^2}{4} \frac{1}{y} \frac{d^2y}{d\lambda^2}$$

et l'on voit que les amplitudes i_1 et i_2 mesurent des « dérivées réduites » de $y = f(\lambda)$. Cette normalisation n'est nullement nécessaire, mais elle présente l'avantage de donner une sensibilité relative constante vis-à-vis des variations de A ou de y .

2.3. RÔLE DE LA SÉLECTIVITÉ DE LA FONCTION D'APPAREIL. — **2.3.1. Évaluation de l'erreur commise; condition pour qu'elle soit négligeable.** — Nous avons, en 2.1, négligé la variation de la fonction

d'appareil A avec la longueur d'onde; en tenant compte cette fois de cette variation, la composante alternative de fréquence N du courant fourni par la cellule peut s'écrire

$$i_1 \simeq \alpha \cos 2\pi Nt \left[\frac{d(Ay)}{d\lambda} \right]_0$$

dont l'amplitude est

$$I_1 = C \alpha \left(\frac{1}{y} \frac{dy}{d\lambda} + \frac{1}{A} \frac{dA}{d\lambda} \right);$$

lorsque I_1 s'annule on a, non pas $\frac{dy}{d\lambda} = 0$, mais

$$\frac{1}{y} \frac{dy}{d\lambda} = - \frac{1}{A} \frac{dA}{d\lambda}.$$

L'erreur δy ainsi faite sur la longueur d'onde λ_M qui rend nul $\frac{dy}{d\lambda}$ est donc liée à la pente logarithmique de $A(\lambda)$ et l'on peut écrire, λ_M étant la valeur qui rend $\frac{dy}{d\lambda}$ nul et $\lambda_M + \delta\lambda$, celle qui rend nul le courant I_1 ,

$$\delta\lambda = \frac{- \frac{1}{A} \frac{dA}{d\lambda}}{\frac{1}{y} \frac{d^2y}{d\lambda^2}}.$$

Si, de plus, $A(\lambda)$ possède un maximum ou un minimum pas trop loin de λ_M , à une distance $\delta'\lambda$ de $\lambda_M + \delta\lambda$, on a

$$\delta\lambda = \delta'\lambda \frac{\frac{1}{A} \frac{d^2A}{d\lambda^2}}{\frac{1}{y} \frac{d^2y}{d\lambda^2}}.$$

L'erreur commise sur λ_M est donc négligeable si la « courbure réduite » de la courbe $y(\lambda)$ est grande par rapport à celle de $A(\lambda)$, ce qui est le cas pour des objets très sélectifs tels que les filtres interférentiels, par exemple. Dans ce cas, la localisation du maximum de transmission peut se faire immédiatement sans aucune correction; il en est de même pour la mesure des largeurs de bande par les points d'inflexion.

En outre, l'erreur tend à s'annuler si le maximum de A est voisin du maximum de y .

2.3.2. Méthodes de mesure dans le cas où la sélectivité d'appareil n'est pas négligeable. — On peut proposer plusieurs procédés pour mesurer correctement les longueurs d'onde λ_M qui rendent maximum $y(\lambda)$, malgré la sélectivité de A et dans le cas où l'approximation précédente n'est plus valable. Seul le troisième a été utilisé en pratique, mais la connaissance du premier sera utile pour la suite de l'exposé.

2.3.2.1. Correction de la fonction $A(\lambda)$. — On peut interposer quelque part sur le trajet lumineux un filtre dont la transmission soit, au moins dans un domaine limité, $B(\lambda) = \frac{1}{A(\lambda)}$. En principe, cela

peut s'obtenir en formant un spectre intermédiaire sur lequel on dispose un cache (fig. 2) découvrant

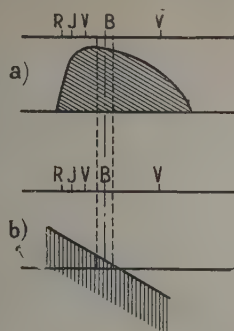


Fig. 2.

a. Correction totale de $A(\lambda)$;

b. Correction locale annulant $\frac{dA}{d\lambda}$.

pour chaque longueur d'onde, une hauteur de spectre, $H(\lambda) = \frac{1}{A(\lambda)}$. Mais ce cache est très difficile à réaliser : de petites irrégularités du cache créent des valeurs locales élevées de la dérivée $\frac{dH}{d\lambda}$ et, en outre, on s'astreint ainsi à une luminosité d'ensemble très faible, égale à celle du système aux frontières du domaine d'utilisation.

On peut toutefois faire en sorte que $\frac{dA}{d\lambda}$ soit nulle pour une λ donnée : il suffit de disposer sur un spectre intermédiaire un cache en forme de couteau orientable par rapport à la direction du spectre. Le réglage de l'orientation peut se faire très simplement en observant le courant i_1 , pour la longueur d'onde choisie, en l'absence de l'objet à étudier.

On ne peut, certes, songer à trouver des filtres en verre coloré ou de type interférentiel dont la transmission soit précisément l'inverse de $A(\lambda)$, mais il est important de noter pour la suite que l'on peut, avec de tels filtres, améliorer la réponse $A(\lambda)$, c'est-à-dire diminuer, ou inverser, dans des domaines restreints, sa pente et sa courbure.

2.3.2.2. Méthodes différentielles. — Si l'on admet que l'on puisse disposer de deux cellules photo-électriques dont les réponses spectrales soient proportionnelles, on peut éliminer complètement le rôle de $A(\lambda)$ par une méthode différentielle. Étant donné la difficulté de trouver des cellules répondant à cette condition, il ne semble pas utile d'exposer ici la méthode; signalons seulement qu'elle utilise la normalisation séparée de la réponse de chaque cellule.

2.3.2.3. Méthode d'itération. — Montrons que la méthode de correction locale (2.3.2.1) permet dans certaines conditions de déterminer par approxi-

mations successives la longueur d'onde pour laquelle $y(\lambda)$ est maximum.

En l'absence de correction, on sait déterminer λ_1 telle que

$$\frac{1}{y} \frac{dy}{d\lambda} = - \frac{1}{A} \frac{dA}{d\lambda};$$

on peut alors à l'aide du couteau, annuler le courant i_1 à vide pour λ_1 ; on transforme ainsi A en A_1 , tel que

$$\left(\frac{dA_1}{d\lambda} \right)_{\lambda_1} = 0;$$

on cherche alors λ_2 tel que

$$\frac{1}{y} \frac{dy}{d\lambda} = - \frac{1}{A_1} \frac{dA_1}{d\lambda}$$

et ainsi de suite. La plupart du temps, ce processus est convergent et conduit vers λ_M . Pour en discuter, nous supposons que A possède un maximum pour λ_0 voisin de λ_M et nous assimilons les courbes $\frac{1}{F} \frac{dF}{d\lambda}$ à leurs tangentes au voisinage de λ_M .

L'action du couteau sur A se traduit par

$$A_1 = \alpha A [1 + \beta (\lambda - \lambda_1)]$$

et

$$\frac{1}{A_1} \frac{dA_1}{d\lambda} = \frac{1}{A} \frac{dA}{d\lambda} + \frac{\beta}{1 + \beta (\lambda - \lambda_1)}$$

devient nul pour

$$\lambda = \lambda_1, \quad \text{d'où} \quad \beta = \left(- \frac{1}{A} \frac{dA}{d\lambda} \right)_{\lambda_1}.$$

Nous verrons bientôt que dans les cas de convergence, λ et λ_1 restent voisins de λ_M ; d'autre part, A présentant un maximum pour λ_0 et une courbure faible au voisinage, le terme $\beta (\lambda - \lambda_1)$ reste négligeable devant 1 dans le domaine de λ qui nous intéresse. Dès lors, la courbe $\frac{1}{A_1} \frac{dA_1}{d\lambda}$ se déduit de $\frac{1}{A} \frac{dA}{d\lambda}$

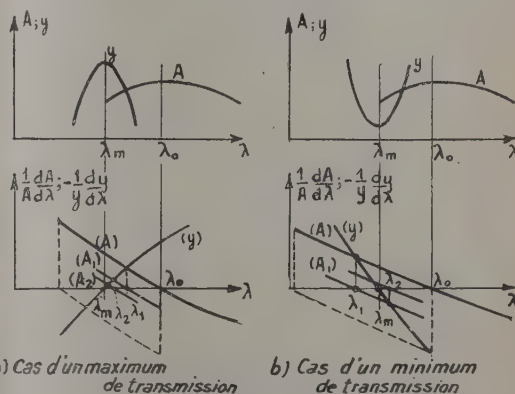


Fig. 3. — Représentation graphique du processus d'itération

par une translation β . On voit alors sur la figure 3 que la condition de convergence s'exprime simplement par $|\lambda_1 - \lambda_M| < |\lambda_0 - \lambda_M|$. Pour y , il en résulte

que la courbe $-\frac{1}{y} \frac{dy}{d\lambda}$ doit couper $\frac{1}{A} \frac{dA}{d\lambda}$ entre λ_0 et $-\lambda_0 + 2\lambda_M$. Donc, pour λ_M ,

$$\frac{d}{dy} \left(\frac{1}{y} \frac{dy}{d\lambda} \right) = \frac{1}{y} \frac{d^2 y}{d\lambda^2}$$

doit être extérieur à l'intervalle

$$\left[0; -2 \frac{d}{d\lambda} \left(\frac{1}{A} \frac{dA}{d\lambda} \right) \right] \simeq \left[0; -\frac{2}{A} \frac{d^2 A}{d\lambda^2} \right].$$

L'itération ne peut converger que si la « courbure réduite » de y au voisinage de son maximum n'est pas simultanément inférieure au double de celle de A et de signe contraire. Pratiquement, il y a convergence chaque fois que y présente un maximum et la convergence est rapide si ce maximum n'est pas trop plat. Dans le cas d'un minimum peu accentué, il peut y avoir divergence : tel est le cas, par exemple, des verres traités en antireflets.

2.3.2.4. *Recherches à λ constant d'un maximum en fonction d'un autre paramètre.* — Ce problème se présente pour chercher, par exemple, dans le cas d'un filtre non uniforme, à quel endroit (ou pour quelle incidence) sa bande passante se trouve à une longueur d'onde donnée; c'est aussi le cas de la préparation des couches minces diélectriques dont le facteur de réflexion pour un λ donné passe par un minimum lorsque leur épaisseur optique passe par la valeur $\frac{\lambda}{4}$. Dans ce cas, il suffit de réaliser, pour la longueur d'onde choisie, l'annulation locale de $\frac{dA}{d\lambda}$ par la méthode du couteau orientable dans le spectre intermédiaire. Nous donnerons un exemple d'application au paragraphe 5.

3. **Réalisation.** — Parmi les diverses réalisations possibles, nous décrirons seulement celle qui a été mise au point et qui est utilisée au laboratoire.

3.1. **SYSTÈME OPTIQUE.** — La source est une lampe d'auto à filament de tungstène alimentée à tension constante (avec une batterie montée en tampon) de façon à éviter toute variation de sa répartition spectrale, qui intervient dans $A(\lambda)$. Elle est projetée sur la fente d'un spectroscopie S à déviation constante, dont on peut faire tourner le prisme au moyen d'un bouton gradué en longueurs d'onde.

L'objet à étudier est placé en y s'il s'agit d'étudier sa transmission; une modification, non dessinée sur la figure 4 permet d'étudier la réflexion. Un spectre intermédiaire est produit en Sp , et dans son plan se trouve un couteau orientable suivant le schéma de la figure 2.

Ce spectre est projeté sur la fente F_2 d'une boîte à cellule après réflexion sur un miroir vibrant MV . La distance $MV-F$ étant de l'ordre de 50 cm et la

dispersion moyenne dans le plan de F de 100 Å/mm, il suffit d'une amplitude de vibration de 6' pour obtenir une amplitude de modulation de λ de 100 Å.

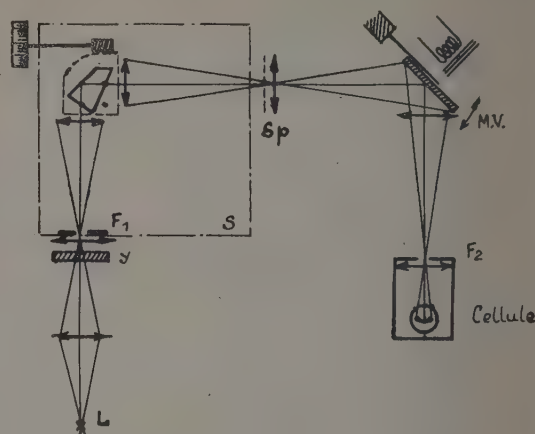


Fig. 4. — Schéma optique de l'appareil.

Cette vibration est obtenue au moyen d'un électro-aimant alimenté par le secteur, le miroir étant porté par une lame élastique en acier dont la fréquence propre est 100 p/s; un petit autotransformateur variable permet de faire varier à volonté l'amplitude de vibration.

3.2. **PARTIE ÉLECTRIQUE.** — La cellule photo-électrique est un multiplicateur d'électrons du type RCA 931 A. Sa tension d'alimentation, fournie par un système de redressement classique, peut être contrôlée au moyen d'une lampe « rhéostat » L_1 pour réaliser une variation du coefficient d'amplification de la cellule permettant la normalisation mentionnée en 2.2.2. A cet effet, le courant de cellule crée aux bornes de la résistance R une différence de potentiel dont la partie continue est appliquée, par l'intermédiaire d'un filtre passe-bas $C_1 R_1$ à la

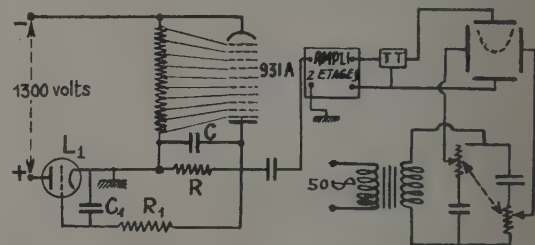


Fig. 5. — Schéma électrique.

grille de L_1 . L'ensemble règle automatiquement la tension appliquée à la cellule, de telle sorte que la tension continue aux bornes de R soit à très peu de chose près constante, ce qui réalise la normalisation cherchée. Lorsque le flux lumineux tombant

sur la cellule est faible, le coefficient d'amplification de la cellule devient grand et les fluctuations de courant d'obscurité peuvent commencer à devenir gênantes : on peut les atténuer sensiblement au moyen du condensateur C. La partie alternative de la tension R_i est amplifiée par un amplificateur très classique à deux étages, puis appliquée aux plaques de déviation verticale d'un tube cathodique : un filtre à double T est interposé de façon à supprimer les tensions parasites à 50 p : s. Le balayage du tube cathodique est assuré directement par le 50 p : s du secteur qu'un dispositif déphaseur classique permet de mettre en phase convenable par rapport au courant photoélectrique. L'existence d'une composante de fréquence N dans le courant peut ainsi donner une lemniscate symétrique : la présence de la composante de fréquence $2N$ déforme la courbe de façon très visible et l'absence de fréquence N donne une figure très facile à identifier même en présence de composante $2N$. On peut donc juger très facilement de l'extinction des fréquences N et $2N$ et trouver ainsi les maxima et les points d'inflexion de $y(\lambda)$; il est préférable de choisir une assez faible modulation en λ pour la recherche d'un maximum et une beaucoup plus forte pour la recherche d'un point d'inflexion.

Il serait avantageux, pour un appareil de routine, d'amplifier et de détecter séparément, au moyen de ponts de phase alimentés respectivement à 100 et 200 p : s, les composantes de fréquence N et $2N$: on pourrait ainsi en lire séparément l'amplitude et le signe sur deux milliampèremètres distincts. Mais le système à tube cathodique, plus rapide à construire, donne déjà des résultats excellents.

4. Résultats. — Pour éprouver la sensibilité et la fidélité du système, nous avons cherché à localiser les franges sombres et les franges brillantes par réflexion sur une lame de cryolithe en forme de coin déposée sur une lame de verre noircie de l'autre côté. L'épaisseur de cryolithe variait entre 0,2 et 0,8 μ et l'on pouvait voir sur la lame trois franges sombres distantes d'environ 15 mm. Les mesures furent faites à λ constant (5400 Å), la correction de $\frac{dA}{d\lambda}$ étant faite par le procédé du couteau indiqué en 2.3.2.1. L'observation à l'oscilloscope permit de localiser les franges sombres à $\pm 0,1$ mm près, ce qui correspond à une variation d'épaisseur de $\frac{\lambda}{300}$; la précision de pointé des franges brillantes était un peu moins bonne et correspondait à une variation d'épaisseur de $\frac{\lambda}{150}$. La précision est donc excellente, étant donné que le facteur de réflexion d'une lame de cryolithe déposée sur verre varie assez lentement en fonction de l'épaisseur.

La détermination de la position de la bande passante d'un filtre interférentiel se fait directement,

sans aucune correction (voir 2.3.1) à quelques angströms près et ne demande pas plus de 1 mn ; il en est de même pour la largeur de bande qu'on détermine à quelques pour-cent près.

Dans le cas des systèmes très peu sélectifs, dont le maximum de réflexion est totalement inconnu d'avance, la méthode d'itération (voir 2.3.2.3) peut être nécessaire ; la mesure est alors un peu plus longue et sa précision dépend beaucoup de la sélectivité de l'objet étudié. A titre d'exemple, on obtient pour la transmission d'un filtre Wratten 58 B 2, dont le facteur de transmission est donné par la figure 6, les valeurs successives $\lambda_1, \lambda_2, \dots$ suivantes :

- a. 5480, 5290, 5255, 5249, 5242, 5243, 5242 ;
- b. 5190, 5235, 5240, 5243, 5243.

(On est volontairement parti de deux positions initiales arbitraires du couteau) ; ces valeurs sont

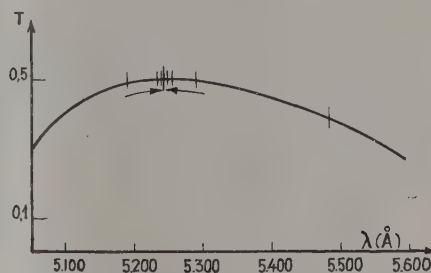


Fig. 6. — Itération dans le cas d'un filtre peu sélectif.

reportées sur la courbe $T(\lambda)$; on voit que la détermination du maximum est beaucoup plus précise que par la mesure directe de T .

5. Application à l'étude et à la préparation de couches minces. — La connaissance précise de la longueur d'onde pour laquelle la réflexion d'une lame est maximum ou minimum, jointe à la connaissance de son épaisseur, facile à obtenir par interférométrie, permet de connaître l'indice de la substance.

En outre, la méthode exposée fournit un procédé très efficace de contrôle de l'épaisseur optique d'une lame mince non absorbante, pendant sa préparation même et la détermination exacte du moment où cette épaisseur optique atteint le quart d'une longueur d'onde fixée (ou un multiple de $\frac{\lambda}{4}$). En effet, le facteur de réflexion R de la lame ne dépend que de $\frac{ne}{\lambda}$ et si l'on néglige la dispersion de n , toujours très faible, on a

$$\frac{1}{e} \left(\frac{dR}{d\lambda} \right)_e = \frac{1}{\lambda} \left(\frac{dR}{de} \right)_\lambda,$$

ce qui indique qu'on obtient le même résultat en

cherchant le maximum de R en fonction de λ ou en fonction de e . On opère donc, par réflexion, de

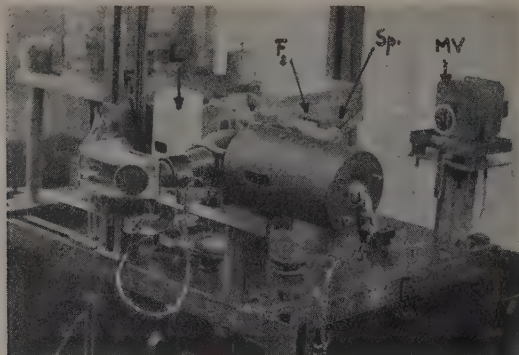


Fig. 7. — Montage sur l'évaporateur.

la façon suivante, dans le cas où le dépôt de la lame mince doit être effectué sur une lame en verre : on réalise avant évaporation la correction locale

de la fonction d'appareil pour la longueur d'onde choisie, le faisceau se réfléchissant sur la lame de verre nue, dont la réflexion est pratiquement indépendante de λ ; il est commode de choisir la phase du balayage de façon à obtenir approximativement une lemniscate quand le système est déséquilibré. Ensuite, on ne touche plus à aucun des réglages et l'on procède à l'évaporation, en suivant la figure sur l'oscilloscope : lorsque l'épaisseur croît, la figure de Lissajous primitivement réduite à un segment de droite horizontal prend rapidement de l'amplitude, puis reste assez longtemps sans variation importante; quand l'amplitude commence à décroître de façon sensible, on arrive rapidement à l'équilibre, que l'on peut repérer avec une grande précision, I_1 variant à peu près linéairement en fonction de e (donc du temps) au voisinage de $I_1 = 0$. Il suffit de manœuvrer un écran convenable pour arrêter l'opération au moment propice.

La figure 7 donne la photographie du montage réalisé au Laboratoire pour l'évaporation de couches multiples.

Manuscrit reçu le 10 décembre 1951.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM.
PHYSIQUE APPLIQUÉE.

SUPPLÉMENT AU N° 2.
TOME 13, FÉVRIER 1952, PAGE 64 A.

EXPÉRIENCES D'OPTIQUE ÉLECTRONIQUE

Par CHARLES FERT.

Laboratoire d'Optique électronique. Toulouse.

Sommaire. — Description d'un appareil simple d'Optique électronique. Emploi comme appareil de démonstration.

Nous avons construit un appareil destiné à servir de banc d'optique simple pour des essais et des expériences d'Optique électronique. En outre, cet appareil muni d'un écran de grandes dimensions, permet de montrer à un auditoire les expériences fondamentales d'Optique électronique.

Nous nous proposons de le décrire dans cet article, ainsi que quelques-unes des expériences de démonstration qu'il permet de réaliser.

Description générale de l'appareil. — L'installation comprend essentiellement (fig. 1) :

- Un tube à vide démontable;
- Des lentilles électroniques;
- Des générateurs;
- Un groupe de pompes.

1° *Le tube à vide.* — Le tube à vide (fig. 2), porté par un banc d'optique ordinaire, comprend diffé-

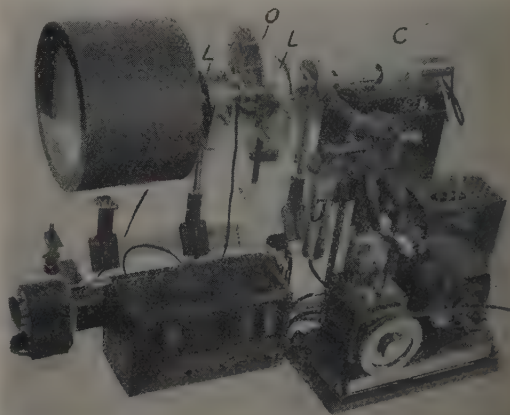


Fig. 1. — Vue d'ensemble de l'appareil.
G, générateur; Ch, accumulateur; L, lentilles; C, canon à électrons; J, jauge; O, porte-objets.

rents éléments raccordés par des joints dont l'étanchéité est assurée par un anneau de néoprène. Le montage et le démontage sont rapides et simples.

Les électrons accélérés parcourent, à la sortie de l'anode, un tube de laiton prolongé par la partie évasée d'un tube de télévision dont l'écran fluorescent a un diamètre de 30 cm ⁽¹⁾.

Le porte-objets, représenté sur la figure 2, permet de substituer l'un à l'autre huit objets ou diaphragmes différents, sans perturber le vide, par simple rotation du bouton *b*. Il est ainsi possible de présenter plusieurs expériences au cours d'une même séance de cours sans qu'une rentrée d'air soit nécessaire.

Les tubes de raccord entre l'anode et le porte-objets, le porte-objets et la partie évasée, peuvent être remplacés, suivant les expériences, par des éléments de différentes longueurs.

2° La source d'électrons. — Le canon à électrons (fig. 3) est du type aujourd'hui classique : un filament de tungstène porté à l'incandescence émet les électrons ; ceux-ci sont accélérés par le champ électrique qui règne entre l'anode et le filament. Le cylindre de Wehnelt, porté à un potentiel réglable, joue le rôle d'une lentille électrostatique. Il permet de contrôler l'éclairement électronique et de rendre cet éclairement uniforme.

L'intervalle Wehnelt-anode est couramment de l'ordre de 4 mm.

On peut substituer l'une à l'autre des anodes dont l'ouverture varie de 0,5 à 2 mm. Cette opération est très simple, de même que le remplacement du filament.

Il est possible de modifier sous tension la distance filament-Wehnelt et de centrer le filament. Les dimensions du tube de verre T ont été choisies pour permettre une accélération pouvant atteindre 50 kV ⁽²⁾.

3° Lentilles électroniques magnétiques ⁽³⁾. — Les expériences de démonstration, en Optique électronique, n'exigent pas l'emploi des lentilles puissantes utilisées en Microscopie électronique. Des bobines

courtes, sans fer ou avec un circuit magnétique simple sont suffisantes. Ces lentilles sont extérieures

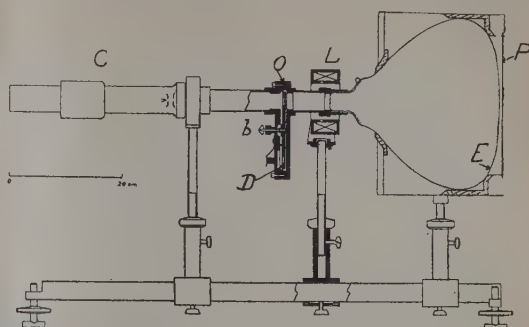


Fig. 2. — Tube à vide.

C, canon à électrons; O, porte-objets; *b*, bouton de commande de la rotation du disque D; sur la périphérie de celui-ci sont disposés huit ouvertures servant de logements aux objets ou diaphragmes; E, écran fluorescent; P, feuille de protection en plexiglass; L, lentille magnétique.

au tube. Leur support, monté sur le banc d'optique, permet de les centrer et de les orienter. Nous avons couramment utilisé deux lentilles du type représenté sur la figure 2. La bobine excitatrice comprend environ 2 000 tours de fil de cuivre émaillé de 5/10^e de millimètre de diamètre.

Il est facile de prévoir l'emploi de lentilles munies de pièces polaires pour réaliser une loupe puissante : le canal de cette lentille viendrait alors se substituer à l'un des éléments du tube de laiton.

Indiquons ici que différentes bobines déflectrices, dont nous verrons l'intérêt au cours de la description des expériences, peuvent être montées sur le tube.

4° Alimentation électrique. — Le courant d'excitation des lentilles magnétiques est fourni par la batterie du laboratoire. Le chauffage du filament

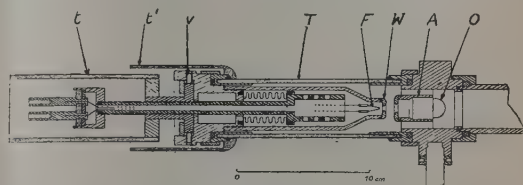


Fig. 3. — Canon à électrons.

F, filament de tungstène, $\Phi = 0,12$ mm; W, cylindre de Wehnelt; A, anode. La rotation du tube de carton-bakélite *t* fait varier la distance filament-Wehnelt; quatre vis de réglage V permettent le centrage du filament; *t'*, cylindre de plexiglass entourant les éléments portés à haute tension; T, tube de verre pyrex; O, raccord avec le groupe de vide. De profondes rainures hélicoïdales sont ménagées dans la partie périphérique du support d'anode pour assurer l'efficacité du pompage dans le canon.

⁽¹⁾ L'emploi de ce tube de télévision n'est commode que pour des expériences de démonstration. Pour une étude de laboratoire, il est préférable de lui substituer une chambre munie d'un dispositif permettant d'introduire une plaque photographique dans le vide, afin de pouvoir enregistrer commodément les images électroniques. Un modèle simple de chambre, en voie de réalisation, ne sera pas décrit dans cet article.

⁽²⁾ Le réglage de la distance filament-Wehnelt, le centrage du filament ne sont pas indispensables pour les expériences de démonstration. Si on limite l'appareil à cet usage, les dimensions du tube de verre peuvent être réduites, une tension de 5 à 10 000 V étant suffisante pour montrer les expériences de formation des images. Il est possible, dans ce cas, de prévoir un canon à électrons de réalisation plus simple.

⁽³⁾ Nous ne parlerons ici que de l'emploi de lentilles magnétiques. Il est facile de prévoir, sur l'un des éléments du tube à vide, la mise en place d'électrodes isolées de révolution constituant une lentille électrostatique.

(1,5 A, 2 V) est assuré par un accumulateur enfermé dans une boîte de bois bakélisé de 2 cm d'épaisseur qui suffit à assurer son isolement jusqu'à 25 kV.

La même boîte contient une pile de polarisation Wehnelt et deux rhéostats pour le réglage du courant de chauffage et de la tension Wehnelt. Ces rhéostats sont commandés par des tiges isolantes et réglables même quand la haute tension est établie.

Pour produire la haute tension continue, nous nous sommes d'abord adressé à un générateur simple monté au laboratoire et qui pouvait fournir quelques millampères sous 6 000 V. Cette accélération, suffisante pour la majorité des expériences relatives à la formation des images, est un peu faible si l'on désire montrer aisément des diagrammes de diffraction électronique.

Nous voulions éviter l'emploi de générateurs lourds et encombrants. Une solution élégante (et peu onéreuse) nous a été fournie par l'emploi de l'alimentation haute tension (25 kV, 200 μ A) prévue pour un appareil de télévision par projection. Pour l'adapter à nos besoins, elle a été transformée au laboratoire afin d'isoler la sortie de cathode, la sortie d'anode étant mise à la masse. Le transformateur haute tension étant suivi d'un tripleur de tension, nous avons profité de cette circonstance pour disposer des tensions intermédiaires : 8,3 et 16,7 kV.

On aperçoit l'alimentation et ses trois sorties sur la figure 1. L'encombrement réduit de ce générateur est très remarquable.

5° *Le groupe de pompes.* — Le groupe de pompes comprend les éléments habituels, rassemblés sur un même bâti : pompe primaire à palettes, pompe secondaire à diffusion d'huile, jauge à ionisation à cathode froide et système de vannes (fig. 1).

Il faut moins de 15 mn pour réaliser une pression de 0,1 à 0,3 μ de mercure, convenable pour la bonne marche des expériences, en partant d'une installation au repos.

La liaison avec le tube à vide est réalisée au moyen d'un soufflet métallique terminé par deux joints démontables. Le groupe est ainsi indépendant de l'installation et il peut être utilisé pour d'autres expériences.

Expériences d'Optique électronique. — L'appareil que nous venons de décrire, lorsqu'il est équipé avec l'écran fluorescent de 30 cm, est très commode pour montrer les expériences d'Optique électronique à un auditoire et il nous paraît répondre aux nécessités de l'enseignement.

Nous ne pensons pas que la visibilité des expériences soit la seule condition requise d'un montage destiné à cet usage. Un appareil de démonstration doit pouvoir être transporté et monté dans un amphithéâtre chaque fois que la progression du cours l'exige. Ces opérations doivent rester commodes et rapides. Il doit être de construction assez simple pour qu'un établissement d'enseignement puisse envisager sa réalisation, car il est désirable que de telles expériences ne restent pas le monopole

de quelques laboratoires spécialisés. Enfin, il doit être transformable, afin de permettre les montages très variés qu'un professeur imagine toujours pour adapter les expériences à son enseignement.

Cette dernière condition élimine l'emploi de tubes scellés qui ont parfois été utilisés (*). D'ailleurs, la nécessité de faire le vide dans une enceinte ne doit plus être considérée comme un obstacle. La collection de Physique d'un laboratoire d'enseignement, possède généralement un groupe de pompes à vide dont il existe des modèles à grand débit et peu encombrants.

Des appareils de démonstration démontables ont déjà été présentés, en particulier par H. Seemann d'une part, par G. Möllenstedt d'autre part [2]. Malheureusement, il est difficile d'envisager la large diffusion de ces « projecteurs électroniques » dans les laboratoires d'enseignement.

L'appareil que nous utilisons est plus modeste : il occupe, sur une table ordinaire, une surface de l'ordre de 90 \times 80 cm², y compris le groupe de pompes et les générateurs. Tous les éléments sont visibles de l'auditoire (fig. 1). Le transport, le montage et la mise en service exigent 1 h environ (*).

Nous décrivons, à titre d'exemple, quelques-unes des expériences présentées au cours de Physique électronique à la Faculté des Sciences de Toulouse.

Pour des expériences de démonstration, les objets disposés dans les logements du porte-objets sont constitués par des disques de laiton dans lesquels ont été ménagées des ouvertures de différentes formes : flèche, fente, trou, croix de Malte, etc., ou par une toile métallique.

1° *Propagation rectiligne.* — Le trou d'anode (*) est une source d'électrons d'étendue assez faible. Disposons un objet sur le trajet du faisceau électronique : son ombre portée se dessine sur l'écran. L'emploi d'une croix de Malte rappelle une expérience classique de Crookes.

2° *Formation d'images.* — Une seule lentille L est disposée entre le porte-objets et l'écran. La lentille n'étant pas excitée, l'ombre de l'objet est visible sur l'écran.

Excitons la lentille. Elle fait converger les rayons électroniques. Pour une certaine excitation, l'image de l'anode A se forme sur l'écran. Pour une excitation plus grande, on observe l'image de l'objet disposé dans le porte-objets.

La distance objet-lentille étant convenablement

(*) Voir, par exemple [1]. Rappelons qu'un appareil de démonstration pour la Diffraction électronique a été présenté en France dès 1937 par M. J. Trillat au Palais de la Découverte.

(*) Cet appareil a été présenté en fonctionnement à l'Exposition de la Société française de Physique (Paris, mai 1951). Entièrement démonté pour le transport, sa mise en service a été rapide.

(*) Pour simplifier l'exposé, nous supposons que le trou d'anode joue le rôle de source.

choisie, l'image couvre la plus grande partie de l'écran.

Les figures 4, 5, 6, sont des photographies de l'écran pour différents objets : flèche, croix, grille.



Fig. 4. — Image d'une flèche.

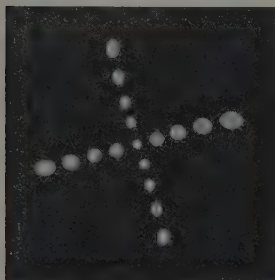


Fig. 5. — Image d'une croix.

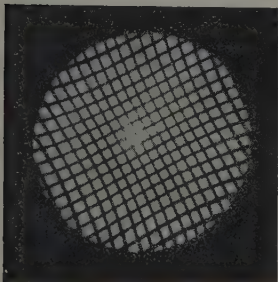


Fig. 6. — Image d'une grille.

3° *Mise au point de l'image.* — La mise au point se fait par réglage du courant d'excitation de la lentille.

La source électronique étant de faible étendue, la latitude de mise au point est très grande. Il est possible de la réduire en utilisant la méthode ingénieuse proposée par Le Poole [4]. Sa mise en œuvre se prête ici à une réalisation très simple.

Deux bobines défectrices D sont disposées immédiatement en avant de l'objet et alimentées en courant alternatif (fig. 7). Chaque point de l'objet est

alors traversé par un pinceau dont l'inclinaison varie entre les deux positions extrêmes 1 et 2. Tout se passe comme si l'ouverture du faisceau correspondant à ce point de l'objet avait augmenté. L'image « vibre » si la lentille n'est pas convenablement excitée. Cette « vibration » disparaît, au moins

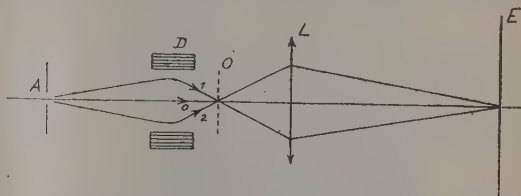


Fig. 7. — Dispositif de mise au point des images (dans toutes les figures, la trajectoire est conventionnellement tracée dans le plan de la feuille).

dans la région centrale du champ (¹), si la mise au point est bonne.

Il suffit alors de ne plus alimenter les bobines défectrices pour observer l'image dans les conditions normales.

4° *Rotation de l'image.* — La rotation de l'image caractéristique des lentilles magnétiques s'observe aisément en faisant varier l'excitation de la lentille. L'inversion du courant d'excitation provoque une rotation de l'image double de la rotation simple due à la lentille. La figure 8 a été obtenue en photographiant sur la même plaque l'image d'une flèche pour les deux sens du courant.

Cette rotation est particulière aux lentilles magnétiques. Elle n'a pas d'équivalent en Optique ou en Optique électronique électrostatique.



Fig. 8. — Rotation de l'image.

5° *Images multiples.* — Une bonne image étant obtenue sur l'écran, augmentons progressivement l'excitation de la lentille : l'image disparaît d'abord, puis une nouvelle image apparaît sur l'écran. Celle-ci peut être mise au point par la méthode déjà décrite.

(¹) L'image vibre toujours un peu dans la région la plus éloignée du centre. Cet effet est dû à la courbure de champ de la lentille.

Dans ce cas, une première image I_1 se forme à l'intérieur de la région où règne le champ magnétique de

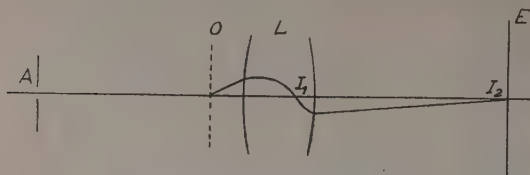


Fig. 9. — Images multiples.



Fig. 10. — Image d'une flèche, en présence d'une image intermédiaire.

la lentille et c'est une image I_2 qui est visible sur l'écran (fig. 9 et 10).

En augmentant encore l'excitation, il peut exister 2, 3, ... images intermédiaires (*).

On sait que les images électroniques obtenues par des lentilles électrostatiques présentent les mêmes types d'aberration que celles qui ont été étudiées en Optique : aberration de sphéricité, coma, astigmatisme, courbure de champ, distorsion. Il s'ajoute, pour les lentilles magnétiques, trois nouvelles aberrations liées à la rotation de l'image : coma anisotrope, astigmatisme anisotrope, distorsion anisotrope.

Ces différentes aberrations peuvent être montrées à un auditoire. Nous nous limiterons aux aspects observés pour celles qui jouent un rôle important

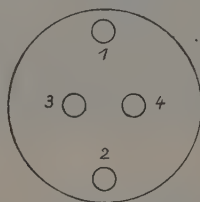


Fig. 11.

en Microscopie électronique : aberration de sphéricité sur l'axe, distorsion.

(*) Ces « foyers » intermédiaires peuvent être rendus visibles par l'ionisation du gaz résiduel, comme cela est réalisé dans l'expérience présentée par J. Thibaud [5].

6° *Aberration de sphéricité.* — L'aberration de sphéricité s'observe d'une manière particulièrement nette dans les conditions suivantes : Prenons pour objet le trou d'anode A. Diaphragmons la lentille L par une fente (largeur : 1 mm, longueur : 25 mm environ).

S'il n'y avait pas d'aberration de sphéricité, nous observerions, pour une certaine excitation, une bonne image du trou d'anode.

En réalité, la lentille est plus convergente pour les rayons marginaux que pour les rayons centraux et les rayons correspondant aux extrémités de la

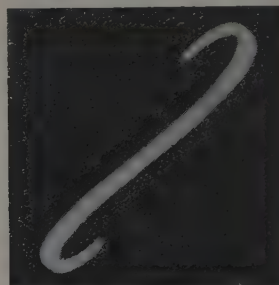


Fig. 12. — Aberration de sphéricité.



Fig. 13. — Aberration de sphéricité.

fente convergent sur l'écran pour une excitation plus faible que celle qui est nécessaire pour amener sur l'écran le foyer des rayons centraux.

En Optique (ou en Optique électronique électrostatique), ce résultat serait peu visible en limitant l'ouverture de la lentille par une fente. On connaît l'artifice habituellement employé : on fixe sur la lentille le diaphragme représenté sur la figure 11. En éloignant progressivement l'écran de la lentille, on rencontre, pour des positions différentes, le foyer des rayons marginaux (pinceaux 1 et 2) et le foyer des rayons centraux (pinceaux 3 et 4).

Cette méthode peut être utilisée en Optique électronique magnétique. Mais une circonstance rend l'emploi d'une fente-diaphragme plus démonstrative : la rotation du méridien mobile suivant le mouvement d'un électron est plus grande pour les

rayons marginaux que pour les rayons centraux. De ce fait, la trace des rayons marginaux ne vient pas recouvrir celle des rayons moins inclinés. On voit, si l'on augmente progressivement l'excitation de la lentille diaphragmée par une fente, la trace des rayons marginaux se rapprocher plus rapidement de l'axe (fig. 12). Pour une excitation toujours croissante, l'écran se trouve placé entre le foyer des rayons marginaux et centraux (fig. 13).

L'expérience qui permet d'observer le phénomène d'une manière continue sur l'écran est très brillante, tout particulièrement s'il existe une image intermédiaire entre l'objet et l'écran (*).

Notons que si l'on supprime la fente, c'est l'intersection de l'écran par la surface caustique que l'on aperçoit sur l'écran.

7° Distorsion. — Prenons pour objet soit une grille, soit une croix, soit une flèche. L'image, après mise au point, est déformée. Dans les conditions où nous nous plaçons ici, le grandissement augmente du centre vers les bords (distorsion isotrope, en croissant) et, de plus, la rotation de l'image est plus grande pour les rayons marginaux que pour les rayons centraux (distorsion anisotrope).

Ces deux effets sont déjà nettement visibles sur les figures 4, 5 et 6 correspondant au cas où il n'y a pas d'image intermédiaire. Il est facile de mesurer, sur les photographies présentées ici, le degré de distorsion. Les distorsions isotrope et anisotrope sont considérablement plus importantes s'il existe une image intermédiaire, comme le montre la figure 10 prise dans ces conditions.

8° Effets des défauts de symétrie de révolution. — Les conditions de réalisation des lentilles électroniques puissantes ont attiré l'attention sur la difficulté d'obtenir un champ qui soit parfaitement de révolution [6], [7]. Lorsque cette symétrie est perturbée, de nouveaux défauts des images apparaissent, dont l'importance est bien connue en Microscopie électronique.

Il est intéressant et facile de montrer à un auditoire les images entachées de tels défauts, en perturbant volontairement la symétrie de révolution du champ.

Pour une lentille magnétique du type utilisé ici, il suffit, par exemple, de disposer quatre plaquettes de fer doux, identiques entre elles, à 90° l'une de l'autre dans la région de l'isthme de laiton de la lentille, où elles sont retenues par attraction magnétique. La figure 14 représente l'image agrandie de la source, prise dans ces conditions.

On peut évidemment varier le type de symétrie en utilisant un nombre différent de plaquettes.

(*) Les photographies reproduites sur les figures 12 et 13 ont été prises dans ces conditions. S'il y a deux images intermédiaires, ou davantage, les aberrations sont encore plus importantes et les figures obtenues plus compliquées.

Remarque. — Toutes les expériences que nous venons de citer se font en utilisant une tension de l'ordre de 5 à 10 000 V. Cette accélération est

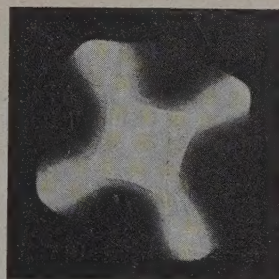


Fig. 14.

très suffisante pour la visibilité des expériences et il est possible de montrer la formation d'images intermédiaires sans une excitation exagérée de la lentille.

9° Diffraction électronique. — En diffraction électronique, une tension d'accélération élevée est préférable pour obtenir aisément les phénomènes. Nous utilisons 18 ou 25 kV.

Le spécimen sera habituellement un film mince de métal (or, argent) déposé, par évaporation dans le vide, sur une pellicule de collodion. La tenue de cette pellicule est fortement accrue si elle est supportée par une grille métallique à mailles fines (200 mailles par inch). Cette technique de préparation est celle qui est utilisée couramment en Microscopie électronique.

Le trou d'anode sera choisi un peu plus petit que dans les expériences précédentes. Cependant, le but recherché étant un diagramme brillant, dont la finesse peut n'être pas très grande, il est préférable d'éviter des diamètres inférieurs à 0,5 mm.

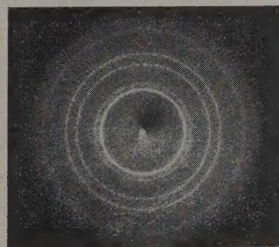


Fig. 15. — Diagramme de diffraction d'un film d'or.

Deux montages sont possibles, qui sont couramment utilisés dans les appareils de laboratoire :

a. Une lentille magnétique, disposée entre l'anode et le porte-objets, forme une image de la source sur

l'écran. Quand on intercale le spécimen, les anneaux de diffraction se peignent sur l'écran.

Pour une tension d'accélération $V = 25\ 000\text{ V}$, la longueur de L. de Broglie des électrons est

$$\lambda = \sqrt{\frac{150}{V}} = 0,077\text{ Å.}$$

Si D est la distance du spécimen à l'écran, le rayon r des anneaux correspondant à une distance réticulaire d est donné par l'expression

$$\frac{r}{D} = \frac{\lambda}{d}.$$

Dans notre appareil, D est voisin de 40 cm. Pour un film d'or, le premier anneau correspond à $d \simeq 2,35\text{ Å}$ son diamètre est de l'ordre de 2,6 cm et celui des anneaux extérieurs s'élève à 7 ou 8 cm.

Le diagramme est nettement visible (fig. 15).

b. Pour agrandir ce diagramme, une deuxième

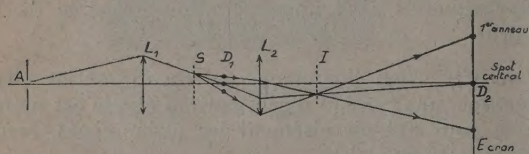


Fig. 16. — Formation d'une image agrandie du diagramme de diffraction.

lentille est disposée entre le spécimen et l'écran (fig. 16). L'excitation de L_1 est augmentée de manière que le diagramme se forme dans la région D_1 . L_2 donne une image agrandie de ce diagramme sur l'écran.

Remarques. — 1° Pour la plupart des expériences, il est indispensable de réaliser un bon centrage de la

lentille. On y parvient en prenant pour objet celui qui est reproduit sur la figure 5. La lentille est bien centrée lorsque l'image du trou axial reste immobile et la figure symétrique pour toute excitation.

2° Pour ne pas alourdir inutilement ce texte, nous nous sommes limité à une description qualitative des expériences. Il est important, au cours d'un enseignement, d'en faire une analyse quantitative.

Les mesures de grandissement et de distance conduisent, comme en Optique géométrique, à la distance focale de la lentille. La rotation de l'image se déduit d'une observation telle que celle qui a été faite pour obtenir la figure 8. Il est alors facile de vérifier les formules aujourd'hui classiques des lentilles électroniques magnétiques.

Les coefficients d'aberrations (aberration sphérique, distorsion peuvent, de même, être déduits de l'expérience.

Nous n'avons pas parlé ici de l'aberration chromatique, mais son étude est très facile car on peut faire varier dans de larges limites la tension d'accélération ou le courant d'excitation de la lentille et observer l'effet qui en résulte.

3° Nous prévoyons d'étendre le champ de ces expériences pour montrer aux étudiants, sur un appareil simple, les techniques essentielles de l'Optique électronique : réalisation d'une source à cathode froide, qui puisse se substituer à la source actuelle; emploi d'une loupe puissante, etc.

4° Le même appareil peut être utilisé avec facilité pour les différentes expériences de déflexion électrique ou magnétique, dont nous avons donné un exemple. On peut constituer un oscillographe cathodique d'enseignement. Cependant, un tube scellé est plus commode dans ce cas.

Manuscrit reçu le 7 novembre 1951.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] DIELS et KNOLL Ch. — Nachweis der Bildfehler von Elektronenlinsen bei Abbildung eines Punktes. *Z. techn. Physik*, 1935, **16**, 617.
- [2] MÖLLENSTEDT G. et HEIDENHEIM Z. — Zur Demonstration von Elektroneninterferenzen und Elektronenmikroskopie. *Optik*, 1948, **3**, 221.
- [3] FERT Ch. — Appareil de démonstration pour l'Optique électronique. *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 2085.
- [4] Le Microscope électronique Philips pour 100 kV. *Rev. techn. Philips*, 1950, **12**, n° 2.
- [5] THIBAUD J. — Effet magnétique longitudinal sur les faisceaux d'électrons lents (concentration et dilatation périodiques). *J. Physique Rad.*, 1929, **10**, 161.
- [6] BERTIN F. — Relation entre les défauts de réalisation des lentilles et la netteté de l'image. *Ann. Radioélectr.*, 1947, **2**, n° 10 et 1948, **3**, n° 11.
- [7] HILLIER J. et RAMBERG E. G. — The Magnetic Elektron Microscope Objective : Contour Phenomena and the Attainment of High Resolving Power. *J. appl. Phys.*, 1947, **18**, 48-71.

RECHERCHE SUR LE FONCTIONNEMENT DE LA TROMPE A EAU.

Par R. F. SIMONIN.
Ingénieur-Docteur.

Sommaire. — Dans ce travail, on étudie le régime d'écoulement dans la trompe à eau, régime qui est transitoire quand la trompe fonctionne en machine pneumatique et devient permanent quand elle cesse d'aspirer. Un calcul de la vitesse d'extraction de la trompe montre l'égale influence de la constante capillaire et de la surface libre du jet. L'expérience confirme cette double influence et montre qu'on obtient le même vide en remplaçant le venturi par un simple ajutage de section convenable.

Jusqu'ici, on s'est surtout attaché à étudier le fonctionnement de la trompe à eau en régime permanent, l'équilibre dynamique de la veine d'eau motrice étant atteint. Ce régime permanent dans lequel la trompe n'entraîne plus de gaz est d'ailleurs étudié par application du théorème de Bernoulli.

On se propose d'analyser ici le régime de la trompe depuis sa mise en marche jusqu'à l'établissement du régime permanent (1). Dans ce régime transitoire, la capillarité joue un rôle prépondérant. C'est elle qui conditionne la formation des bulles de gaz entraîné par le liquide moteur, qu'il y ait ou non ajutage éjecteur.

La formation des bulles est évidemment discontinue et le débit de gaz entraîné à une pression donnée P_0 par la veine motrice, est fonction seulement du nombre de bulles éjectées par seconde et du volume de ces bulles. Ces deux paramètres : nombre de bulles éjectées et volume des bulles, sont donc essentiels à déterminer dans cette étude.

La photographie révèle que, à pression de gaz aspiré constante, et pour un jet de forme invariable, percutant à une distance constante dans un plan d'eau, le rayon des bulles est constant.

Le rayon b d'une bulle éjectée qui évolue ainsi dans l'eau satisfait à la relation de Laplace

$$b = \frac{4A}{\alpha},$$

α étant l'excès de pression dans la bulle, et A la constante capillaire de l'eau. Si P_1 est la pression de l'eau dans laquelle évolue la bulle, P_2 la pression intérieure de la bulle, la théorie conduit à la relation

$$P_2 - P_1 = P_1 - P_0 = \alpha.$$

Dans ces conditions, l'énergie potentielle de la bulle a pour valeur

$$\Delta \mathcal{E}_{P_1} = \frac{4}{3} \pi b^3 \alpha = \frac{4}{3} \pi b^2 4A = \frac{4}{3} AS_b,$$

S_b étant la surface d'une bulle. On a également

$$\Delta \mathcal{E}_{P_1} = \frac{4}{3} AS_b.$$

Ce qui conduit à l'équipartition de l'énergie d'extraction du gaz et de son énergie potentielle disponible.

Une bulle de gaz prélevée la pression P_0 ne peut, en effet, être éjectée à la pression atmosphérique que par une compression dans l'eau à une pression supérieure à la pression atmosphérique. Le rendement mécanique d'une trompe à eau calculé par la méthode habituelle est, de ce fait, obligatoirement inférieur à 0,5.

D'autre part, la relation de Laplace montre que, une constante capillaire étant donnée, et pour une différence

$$P_1 - P_0 = \alpha = \text{const.}$$

le rayon des bulles est constant, ce qui est conforme à la photographie.

La photographie ultrarapide révèle dans l'eau autour du jet, dès sa percussion, la présence d'une gaine d'air ou sac qui se referme ensuite suivant une courbe de gorge, emprisonnant l'air en des volumes élémentaires séparés, amorçant le phénomène périodique stationnaire donnant naissance à des essaims de bulles.

Une légère surpression due à l'énergie cinétique de l'air entraîné dans la couche limite autour du jet comme le veut la théorie de Blasius ou de Karman, se produit dans le sac, augmentant le débit de gaz entraîné. On vérifie aisément cet accroissement de débit en faisant varier la longueur libre du jet percutant, ce qui entraîne la variation corrélative de l'épaisseur de la couche limite.

Théorie et photographie ultrarapide sont également en complet accord pour montrer que, pendant le phénomène périodique stationnaire, les bulles naissent en hémisphères identiques accolés à la surface libre du jet où ils sont uniformément répartis; ces hémisphères tapissent la surface du jet en s'y appuyant par leur équateur, ce qui permet de calculer le nombre de bulles éjectées dans l'unité de temps.

(1) Voir, par exemple, H. BOUASSE, *Jets, tubes et canaux*. — RATEAU, *Nouvelle théorie des trompes* (Rev. de Mécan., septembre 1900).

Soit σ le périmètre de la section normale du jet au droit de la courbe de gorge de la gaine d'air enveloppant le jet dans sa percussion; U , la vitesse périphérique du jet supposée constante. La surface libre Σ du jet qui défile pendant une seconde devant la position de la courbe de striction a pour valeur $\sigma = \Sigma U$.

C'est aussi l'accroissement d'aire par seconde de la surface du jet. Pour une répartition des hémisphères en carrés jointifs à la surface du jet, le nombre de bulles a pour valeur $\nu = \frac{\Sigma}{8b}$. Une répartition en triangles équilatères donne un nombre $\nu' = 1,15 \nu$ environ. On connaît ainsi le débit gazeux entraîné si l'on connaît P_0 .

On remarquera que ν a les dimensions d'une fréquence et peut s'écrire

$$\nu = \frac{\Sigma b}{4b^2} \cdot \frac{U}{2b} = \nu_1 \nu_2,$$

ν_1 étant le nombre de bulles disposées ou réparties sur le périmètre σ en formant un collier autour du jet; ν_1 est une fréquence purement spatiale, ν_2 étant le nombre de colliers de bulles émis par seconde. C'est une fréquence temporelle.

Le calcul indique pour le débit gazeux entraîné à la pression P_0 la valeur

$$q_a = \frac{2\pi}{3} \Sigma A \frac{2P_1 - P_0}{P_0[P_1 - P_0]}.$$

Cette formule fait ressortir l'importance égale des deux facteurs Σ et A dans l'entraînement d'un gaz par un liquide.

La fréquence spatiale ν_1 qui fixe le nombre des demi-bulles d'un collier ne peut augmenter que par sauts brusques, d'unité en unité, toutes les fois que les dimensions du jet, de l'ajutage éjecteur ainsi que la valeur P_0 le permettent. Ceci rend compte de l'ascension par bonds visibles à l'œil nu de la colonne de mercure de l'indicateur de P_0 quand la capacité à vider est faible devant le débit q_a .

Si l'on raccorde un réservoir de gaz à vider de capacité C_1 à une petite chambre hermétique immergée dans l'eau, traversée par un jet d'eau sous pression, le calcul précédent continue à s'appliquer, quelle que soit la forme de l'ajutage éjecteur, fut-il un simple ajutage en mince paroi; rien ne s'oppose théoriquement à vider tout le gaz

contenu dans la capacité C_1 avec ce dispositif par abaissement progressif de la pression P_0 .

L'expérience montre, en effet, qu'il en est bien ainsi et que la présence d'un convergent divergent n'est pas indispensable pour abaisser P_0 jusqu'à la tension de vapeur de l'eau.

En différenciant la relation de Mariotte appliquée au système réservoir-jet, la compression du gaz étant ici isotherme, on aboutit à l'équation

$$q_a = \frac{dV}{dt} = - \frac{C_1}{P_0} \frac{dP_0}{dt} = \frac{2\pi}{3} \Sigma A \frac{2P_1 - P_0}{P_0[P_1 - P_0]}.$$

qui, après intégration, donne la relation

$$t = \frac{3C_1}{2\pi \Sigma A} \left[P_1 - P_0 - P_1 \log \frac{2P_1 - P_0}{P_0 - \theta} \right],$$

θ étant la tension de vapeur de l'eau à la température de fonctionnement.

L'expérience montre bien qu'en ajoutant du savon à l'eau motrice, ce qui diminue la constante capillaire A , le temps t , pour obtenir le même P_0 , augmente corrélativement.

D'après ce qui précède, on diminue t en augmentant Σ , ce qui est possible de quatre manières différentes séparées ou combinées :

- 1° En choisissant un ajutage générateur de jet à grande perturbation (ajutage conique, taraudé, etc.);
- 2° En augmentant les dimensions du jet;
- 3° En augmentant la vitesse du jet;
- 4° En choisissant un jet pour lequel la surface libre de l'unité de masse liquide est maxima.

Les trois premiers points sont faciles à vérifier expérimentalement. Le quatrième point se vérifie parfaitement dans la « trompe laminaire » à jet radial, dont le débit décroît d'abord, puis augmente très sensiblement vers les degrés de vide élevés, mais dont la théorie sort du cadre du présent exposé.

En résumé : la trompe à eau qui entraîne un gaz donne naissance à un régime d'écoulement transitoire qui échappe à la loi de Bernoulli. Dans ce régime transitoire, l'énergie du jet subit une quadripartition; une de ces parties étant l'énergie potentielle des bulles. La constante capillaire du liquide moteur y joue un rôle important.

Manuscrit reçu le 12 août 1951.